

Gerhard Rassl

MISCHFÄLLUNGEN VON ZIRKONPHOSPHAT UND
ZIRKONHYPOPHOSPHAT MIT SILIKAGEL ALS
ADSORPTIONSMITTEL FÜR RADIONUKLIDE

Frankfurt am Main 1963

MISCHFÄLLUNGEN VON ZIRKONPHOSPHAT UND
ZIRKONHYPOPHOSPHAT MIT SILIKAGEL ALS
ADSORPTIONSMITTEL FÜR RADIONUKLIDE

I N A U G U R A L - D I S S E R T A T I O N

zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Johann Wolfgang Goethe-Universität
zu
Frankfurt am Main

Vorgelegt von
GERHARD RASSL
aus
Frankfurt am Main

August 1963

Gedruckt mit Genehmigung
der Naturwissenschaftlichen Fakultät
der
Johann Wolfgang Goethe-Universität
Frankfurt am Main

Dekan: Professor Dr. W. Franz

1. Gutachter: Professor Dr. K. Gleu

2. Gutachter: Professor Dr. P. Royen

Tag der mündlichen Prüfung: 18.12.1963

Meinen lieben Eltern
in Dankbarkeit

INHALTSVERZEICHNIS.

I. Einleitung	5
II. Allgemeiner Teil	9
A. Adsorptionsversuche an reinen Silikatfällungen	21
B. Versuche mit Zirkonphosphat/Silikat-Mischfällungen und Salzsäure als Elutionsmittel	26
a) Elution von $^{204}\text{Tl}^+$	26
b) Elution von $^{137}\text{Cs}^+/\text{Ba}^{++}$	27
c) Elution von $^{90}\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}$	30
C. Versuche mit Zirkonhypophosphat/Silikat-Mischfällungen und Salzsäure als Elutionsmittel	34
a) Elution von $^{204}\text{Tl}^+$	34
b) Elution von $^{137}\text{Cs}^+/\text{Ba}^{++}$	36
c) Elution von $^{90}\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}$	37
D. Elutionsversuche mit Salzlösungen	41
III. Experimenteller Teil	44
A. Meßtechnik	44
a) Messung der β -Strahler	44
b) Messung der γ -Strahler	45
B. Herstellung der Austauscher	50
C. Löslichkeit der Austauscher in Salzsäure	51
D. Herstellung einer reinen Y-Lösung mit TTA	51
E. Arbeitsverfahren bei der Elution	52
IV. Tabellenteil	55
a) Elution von $^{204}\text{Tl}^+$	56
b) Elution von $^{137}\text{Cs}^+/\text{Ba}^{++}$	63
c) Elution von $^{90}\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}$	73
d) Elution von $^{90}\text{Y}^{+++}$ (abgetrennt)	80
V. Kurven	88
VI. Zusammenfassung	119
VII. Literaturverzeichnis	121
Lebenslauf	

I. EINLEITUNG

Ziel dieser Arbeit soll es sein, die in unserer Arbeitsgruppe gefundenen Ergebnisse des Ionenaustauschs mit Mischfällungen von Zirkonphosphaten mit Silikat (1) weiter auszubauen und zu spezialisieren. Schäfer (2) fand, daß die guten Austauschereigenschaften von Zirkonphosphaten erhalten bleiben, auch wenn sie unter besonderen Bedingungen in eine Silikatfällung eingebaut werden. Hierdurch werden die Anwendungsmöglichkeiten dieser Verbindungen für die Säulentechnik erheblich verbessert, denn die erhaltenen Mischfällungen besitzen wesentlich günstigere mechanische Eigenschaften als die reinen Phosphate. Mit ihnen lassen sich auch größere Austauschersäulen füllen, ohne daß der Strömungswiderstand zu groß wird und die Säulen verstopfen. Daß das Silikatgerüst der Mischfällungen sich im saueren Bereich nicht am Ionenaustausch beteiligt, wurde schon von Schäfer angeführt und konnte auch durch Versuche im Rahmen dieser Arbeit voll bestätigt werden.

Während man den Effekt des Ionenaustauschs schon seit dem 19. Jahrhundert an Zeolithen und Grünsanden beobachtete, wurden die ersten synthetischen Austauscher erst zu Beginn des 20. Jahrhunderts hergestellt. Ihre Eigenschaften entsprachen weitgehend denen der natürlichen, waren sie doch auch in ihrer Zusammensetzung diesen sehr ähnlich. Sie wurden von Säuren und Laugen angegriffen und neigten teilweise sogar zur Peptisation. Ihre Anwendung beschränkte sich daher nur auf nahezu neutrale Lösungen, speziell auf die Wasserenthärtung.

Eine erhebliche Bedeutung erlangte der Ionenaustausch erst nach der Entdeckung der Austauscher auf Kunstharzbasis. Bei ihnen erhielt man die Möglichkeit, ihre Eigenschaften planmäßig zu variieren. Zum Unterschied von den bisher bekannten Austauschern, die meist eine kristalline Struktur besitzen, handelt es sich bei den organischen um typische Gele. Ihr Gerüst besitzt keine regelmäßige Struktur, die

Porenweite ist dementsprechend nicht einheitlich. Wegen der guten Eigenschaften der organischen Austauscher, besonders wegen ihrer hohen Austauschkapazität, wurde die weitere Entwicklung der anorganischen über längere Zeit vernachlässigt.

Die Austauscher auf Kunstharzbasis haben aber auch Nachteile. Sie sind bei weitem nicht so spezifisch wie die anorganischen. Sie sind außerdem weniger resistent gegen thermische Belastungen als die anorganischen. Vor allem aber werden beim Arbeiten mit radioaktiven Substanzen die C-C-Bindungen durch die Zerfallsenergie leicht aufgespalten, so daß sie besonders bei hochenergetischen Strahlern ihre Eigenschaften ändern, teilweise sogar zerstört werden. Diese wichtigen Eigenschaften bewirkten eine wieder stärkere Bearbeitung der anorganischen Ionenaustauscher. Sie mußten aber in einem weitaus größeren p_H -Bereich beständig sein als die bisher bekannten.

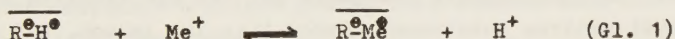
Versuche mit Austauschern, die den Permutiten entsprachen, bei denen jedoch Si teilweise durch Ti(IV) und Sn(IV), Al ganz oder teilweise durch Fe(III), Mn(III) und V(III) ersetzt waren, unternahm Singer bereits 1910. Sie erbrachten keine wesentlichen Verbesserungen. Seine Versuche Si auch durch Zr(IV) oder Pb(IV), sowie Al durch Cr(III) zu ersetzen scheiterten überhaupt.

Größeren Erfolg hatten in jüngerer Zeit Kraus, Carlson, Johnson und Nelson (3 - 6) mit Fällungen von Zirkonoxhydrat, -phosphat und -wolframat. Diese Substanzen sind sowohl gegen Säuren und Laugen als auch gegen oxydierende und reduzierende Lösungen beständig. Sie besitzen Gelstruktur und sind dementsprechend gut quellbar. Sie gleichen in dieser Hinsicht den organischen Ionenaustauschern mit ihrem regellosen Netzwerk von Kohlenwasserstoffketten mit ladungstragenden Gruppen, den Festionen. In den Zwischenräumen bewegen sich frei die die Elektroneutralität bewir-

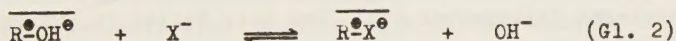
kenden Gegenionen. Durch ihr hohes Quellvermögen können sie in ihrem Zwischenraumvolumen entsprechend große Mengen Lösungsmittel aufnehmen. Dies ermöglicht eine bessere Diffusion der auszutauschenden Ionen und es kommt zu einem wesentlich schnelleren Austausch.

Den Gelen stehen die kristallinen anorganischen Ionenaustauscher mit Raumnetzstruktur gegenüber (z. B. Zeolithe). Sie sind durch ihre starre Struktur kaum quellbar. Diese Eigenschaft setzt sowohl die Austauschgeschwindigkeit als auch die Austauschkapazität herab. Die Kristalle mit Schichtstruktur (z. B. Montmorillonit) stehen in ihrem Verhalten zwischen den Kristallen mit Raumnetzstruktur und den Gelaustauschern.

Der Ionenaustausch hat in mancher Hinsicht eine gewisse Ähnlichkeit mit der Adsorption. Der entscheidende Unterschied beider Vorgänge ist jedoch der stöchiometrische Ablauf der Reaktion beim Ionenaustausch gemäß:



beim Kationenaustauscher und



beim Anionenaustauscher. Die Austauscherphase ist in den Reaktionsgleichungen jeweils überstrichen. Häufig treten aber auch beide Effekte, Ionenaustausch und Adsorption, gemeinsam auf. Daß es sich beim Zr-Phosphat tatsächlich um eine Ionenaustauschreaktion handelt, konnte Amphlett (7, 8) beweisen.

In einer Arbeit über das System $ZrO_2 - P_2O_5$ von A. Burdesej und M. L. Borlera (9) wird für das reine Zirkonphosphat eine Zusammensetzung angegeben, die etwa der Formel $Zr(HPO_4)_2 \cdot aq$ entspricht. Wegen der Dissoziationskonstanten der Phosphorsäure ($p_{K_1} = 1,96$; $p_{K_2} = 6,92$; $p_{K_3} = 11,74$)

liegt aber im sauren Bereich wahrscheinlicher die von Zlobin (10) angegebene Form $\text{ZrO}(\text{H}_2\text{PO}_4)_2$ vor. Es liegt nun die Annahme nahe, daß analog zu den Austauschern auf Kunstharzbasis die Wasserstoffatome durch Kationen ausgetauscht werden können. Da die meisten stark sauren organischen Kationenaustauscher stark dissoziierte Sulfonsäureharze sind, hat man keine so große pH -Abhängigkeit der Adsorption wie bei den hier verwendeten Phosphaten. Diese Abhängigkeit findet man aber bei den Phosphonsäureharzen wieder. Sie erklärt sich aus den unterschiedlichen pK -Werten der einzelnen Dissoziationsstufen. Mit steigender Säurekonzentration wird die Dissoziation stufenweise zurückgedrängt und die Adsorption nimmt entsprechend ab, d. h. die Elution wird stärker (11, 12). Ähnliches Verhalten zeigen auch die schwächer dissoziierten Karbonsäureharze.

Wegen der großen Strahlenresistenz, der thermischen Belastbarkeit und des guten Austauschvermögens eignen sich die Zirkonphosphate besonders gut für das Arbeiten mit radioaktiven Substanzen. Nachteilig ist jedoch, daß man die Fällungen in einer Form erhält, die die Weiterverarbeitung sehr erschwert: die Niederschläge sind äußerst schlecht filtrierbar (13). Nur beim Fällen in extrem verdünnten Lösungen erhält man besser filtrierbare Zirkonphosphat-Niederschläge (14). Die Ausbeuten sind dann allerdings auch so gering, daß sich kaum Untersuchungen in größerem Rahmen durchführen lassen.

Schäfer führte anfangs Versuche durch, bei denen er unter verschiedenen Bedingungen Zirkonphosphat auf vorgegebenen Trägern fällte. Diese Austauscher zeigten zwar die gleichen Austauscheigenschaften wie reines Zirkonphosphat, jedoch haftete dieses nur schlecht an den Trägern, so daß die Eluate Trübungen aufwiesen. Außerdem versuchte er den Niederschlag von reinem Zirkonphosphat zu granulieren, aber

auch hierbei konnten keine zufriedenstellenden Ergebnisse erzielt werden. Sehr gute Ergebnisse erhielt er jedoch mit den eingangs angeführten Mischfällungen aus Zirkonphosphaten mit Silikat.

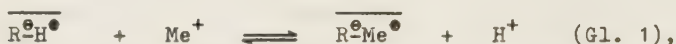
II. ALLGEMEINER TEIL

Beim Ionenaustausch unterscheidet man grundsätzlich zwischen dem Säulen- und dem Batch-Verfahren. Während beim Batch-Verfahren ein geschlossenes System vorliegt und man nur chargenweise arbeiten kann, kann das Säulenverfahren kontinuierlich betrieben werden. Man kann demnach beim Batch-Verfahren in einem Arbeitsgang nur zu einem Gleichgewicht zwischen den Phasen kommen. Beim Säulenverfahren werden zur Trennung zweier oder mehrerer Komponenten die Unterschiede in der Festigkeit ausgenützt, mit der diese vom Austauscher gebunden werden. Man hat ähnliche Verhältnisse wie in der Chromatographie, nur daß hier ein stöchiometrischer Austausch erfolgt. Man spricht deshalb auch von Ionenaustausch-Chromatographie.

Benötigt die Gleichgewichtseinstellung in einer Schicht der Austauschersäule eine im Verhältnis zur Elutionsgeschwindigkeit große Zeit, so können sich aber auch andere Effekte überlagern, die von der unterschiedlichen Austauschgeschwindigkeit herrühren. Es kommt dann zu einer Verbreiterung der Banden. Normalerweise hat man aber in jeder Schicht eine An- bzw. Abreicherung einer Komponente und kommt im günstigsten Fall in einem einzigen Arbeitsgang zur vollständigen Trennung eines Stoffgemischs.

Von Einfluß auf den Austausch sind dabei die Eigenschaften des Austauschers, wie Beladungszustand, Kapazität und Korngröße, sowie die Zusammensetzung des Elutionsmittels, die Strömungsgeschwindigkeit, die Temperatur und natürlich die Eigenschaften des auszutauschenden Ions.

Durch eine Vorbehandlung der Austauscher mit Salzlösungen (15) sollte festgestellt werden, wie weit dies eine Verbesserung der Trennfaktoren bewirkt. Die Reaktionsgleichung 1,



gültig für die Säureform des Austauschers, wird daher erweitert zu



Dabei soll Me_2 ein Radionuklid sein, während es sich bei Me_1 um nicht aktive Metallionen in Makromengen handelt. Je nach Affinität der beiden Ionenarten Me_1 und Me_2 zum Austauscher wird sich das Gleichgewicht mehr oder weniger stark nach der linken oder rechten Seite der Reaktionsgleichung 3 verschieben.

Im allgemeinen steigt innerhalb einer Ionenklasse die Affinität zum Austauscher mit abnehmendem Radius des hydratisierten Ions und höher geladene Ionen werden stärker gebunden als niedriger geladene. Die Reihen steigender Affinität verschiedenwertiger Ionen sind: Li^{+} , H^{+} , Na^{+} , NH_4^{+} , K^{+} , Rb^{+} , Cs^{+} , Ag^{+} , Tl^{+} ; Fe^{++} , Co^{++} , Ni^{++} , Cu^{++} , Zn^{++} , Mg^{++} , Ca^{++} , Sr^{++} , Ba^{++} ; Sc^{+++} , Y^{+++} , Eu^{+++} , Nd^{+++} , Pr^{+++} , Ce^{+++} , La^{+++} . Diese Reihenfolge ist natürlich nicht mehr gültig bei Anwendung von spezifisch wirkenden Ionenaustauschern.

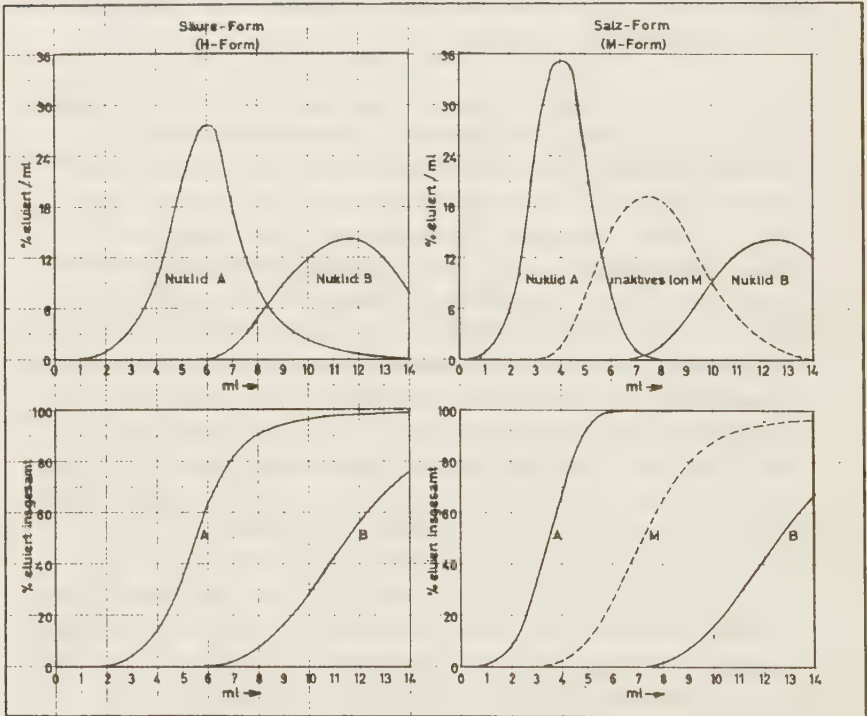
Wie aus den Versuchen dieser Arbeit hervorgeht, ist dies bei den beiden untersuchten Austauschern - Zr-Phosphat und Zr-Hypophosphat - der Fall. Am deutlichsten wird das Abweichen von der allgemeinen Regel bei der Cs/Ba-Trennung. Bei etwa gleichen Ionenradien im nicht hydratisierten Zustand ist zwar durch die stärkere Hydratation des höher geladenen Ions beim Ba^{++} ein größerer Radius als beim Cs^{+} zu erwarten, aber gerade wegen der höheren Ladung sollte auch die Bindung wieder stärker sein, so daß man letztlich mit etwa der gleichen Affinität beider Ionen zum Austauscher rechnen sollte.

In Wirklichkeit wird aber an beiden Austauschern, besonders aber beim Zr-Phosphat, das Cs so fest gebunden, daß sich eine quantitative Trennung durchführen läßt. Eine mit ^{137}Cs beladene Zr-Phosphat-Säule läßt sich daher als ein guter Generator für $^{137}\text{Ba}^m$ verwenden, ohne daß die Reinheit des Bariums durch wiederholtes Eluieren mit 0,1 n Salzsäure nach Wiedereinstellung des radioaktiven Gleichgewichts abnimmt. Das Cs wird erst bei einer Erhöhung der H^+ -Konzentration allmählich eluiert.

Die Metallionen werden zwar stärker als die H^+ -Ionen am Austauscher gebunden, doch werden die Metallionen durch das sich immer wieder neu einstellende Gleichgewicht mit den in einem großen Überschuß vorhandenen H^+ -Ionen mehr oder weniger rasch verdrängt. Wäre ein Metallion weniger fest als H^+ gebunden, so würde sich eine ausgesprochene Front dieses metallions ausbilden. In Näherung ist dies bei Sr^{++} und z. T. bei Y^{+++} der Fall. Je größer allerdings die Affinität eines Ions zum Austauscher ist, d. h. je fester es an ihn gebunden ist, ein umso größeres Volumen an Elutionsmittel wird benötigt und umso mehr wird die Bande dieses Ions gestreckt. Man muß nun bestrebt sein, die einzelnen Banden so weit auseinander zu bringen, daß möglichst keine oder nur geringe Überschneidungen vorkommen.

Durch die Vorbeladung der Säulen mit inaktiven Ionen M soll erreicht werden, daß dieser Abstand in der gewünschten Weise vergrößert wird. Dies geschieht dann, wenn sich die Bande der Ionen M, mit denen die Säule vorbehandelt wurde, zwischen die zu trennenden radioaktiven Ionen schiebt und diese auseinanderdrückt. Voraussetzung dafür ist allerdings, daß die Affinität der Ionen M, mit denen die Vorbehandlung erfolgte, ebenfalls zwischen denen der zu trennenden radioaktiven Ionen A und B liegt: $A < M < B$. Ist dies der Fall, so werden die Ionen A mit der kleinsten Affinität zum Austauscher von diesem nicht oder nur in geringem Maße adsorbiert, da die austauschfähigen Gruppen durch die Vorbeladung weit-

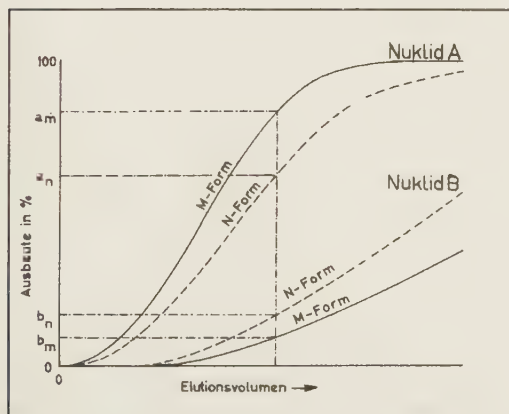
gehend blockiert sind. Die radioaktiven Ionen mit der größten Affinität (B) können aber die inaktiven (M) von ihren Plätzen verdrängen und diese selbst einnehmen. Sie werden erst, nachdem die inaktiven Ionen weitgehend eluiert sind, durch das laufende hohe Angebot von H-Ionen wieder verdrängt. Dieses Verhalten veranschaulichen die vier folgenden Diagramme.



Man kann aus der Lage der Elutionskurven der Säureform und einer Salzform oder zweier Salzformen eines Austauschers bei sonst gleichen Bedingungen erkennen, welches Ion bei eben diesen Bedingungen bevorzugt ausgetauscht wird. Ist die Affinität des inaktiven Ions L, mit dem der

Austauscher vorbeladen wurde, kleiner als die der Radionuklide A und B, so wird L als erstes Ion eluiert und es ist keine Verbesserung in der Trennung von A und B zu erwarten. Nimmt die Affinität aber in der Reihenfolge $A < B < N$ zu, so wird N am stärksten gebunden und blockiert sowohl für A als auch für B die austauschfähigen Gruppen. In diesem Fall kommt man zu keiner oder einer nur sehr unvollkommenen Trennung.

Neben der Affinität der Ionen zum Austauscher ist aber, wie F. G. Prokhorov und S. S. Ivanova (16) feststellten, auch ihre Beweglichkeit von Einfluß. Danach werden Kationen, die an einem Austauscher adsorbiert sind, durch solche mit größerer Beweglichkeit verdrängt. Je größer die Unterschiede in der Beweglichkeit sind, umso bessere Trennergebnisse werden erzielt. Die Ionen werden mit steigender Beweglichkeit immer schwerer eluiert. Dies ist gut erklärlich: die beweglicheren Ionen sind eher in der Lage die ihnen angebotenen austauschfähigen Gruppen zu erreichen als die unbeweglicheren. Letztere sind außerdem meist Ionen mit einer großen Hydrathülle, was wiederum im Einklang mit den allgemeinen Regeln des Ionenaustauschs steht.



$$a_m / b_m > a_n / b_n$$

Wirken sich nun die Einflüsse zweier Salzformen eines Austauschers bei verschiedenen Radionukliden in unterschiedlicher Richtung aus, so kommt man zu einer Veränderung des Trennfaktors. Wird z. B. das Nuklid A an der M-Form des Austauschers leichter als an der N-Form ausge-

tauscht und liegen die Verhältnisse beim Nuklid B in umgekehrter Richtung, so wird man für die Abtrennung des Nuklids A die M-Form vorziehen. Für eine Verbesserung der Trennung ist es nicht einmal unbedingt erforderlich, daß sich der Einfluß in entgegengesetzter Richtung auswirkt. Mitunter bringt schon ein gradueller Unterschied in gleicher Richtung erhebliche Vorteile. Allgemein ist die Form M der Form N umso mehr vorzuziehen, je größer a_m/b_m gegenüber a_n/b_n wird.

In der Gleichung

$$V_{m/n} = \frac{a_m \cdot b_n}{b_m \cdot a_n} \quad (\text{Gl. 4})$$

ist $V_{m/n}$ ein Maß für die Verbesserung des Trennfaktors durch die M-Form gegenüber der N-Form. Je größer dieser Wert gegenüber 1 wird, umso stärker ist die M-Form gegenüber der N-Form zu bevorzugen.

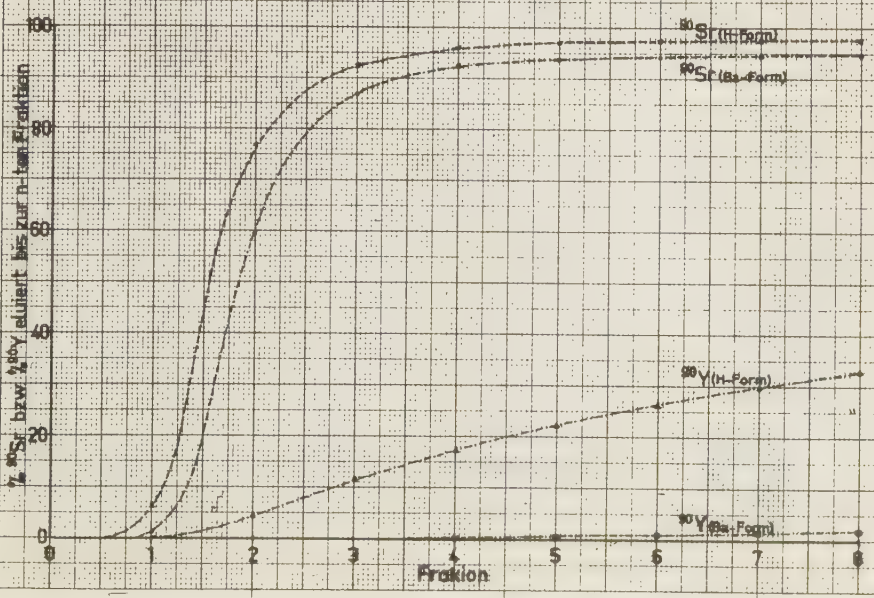
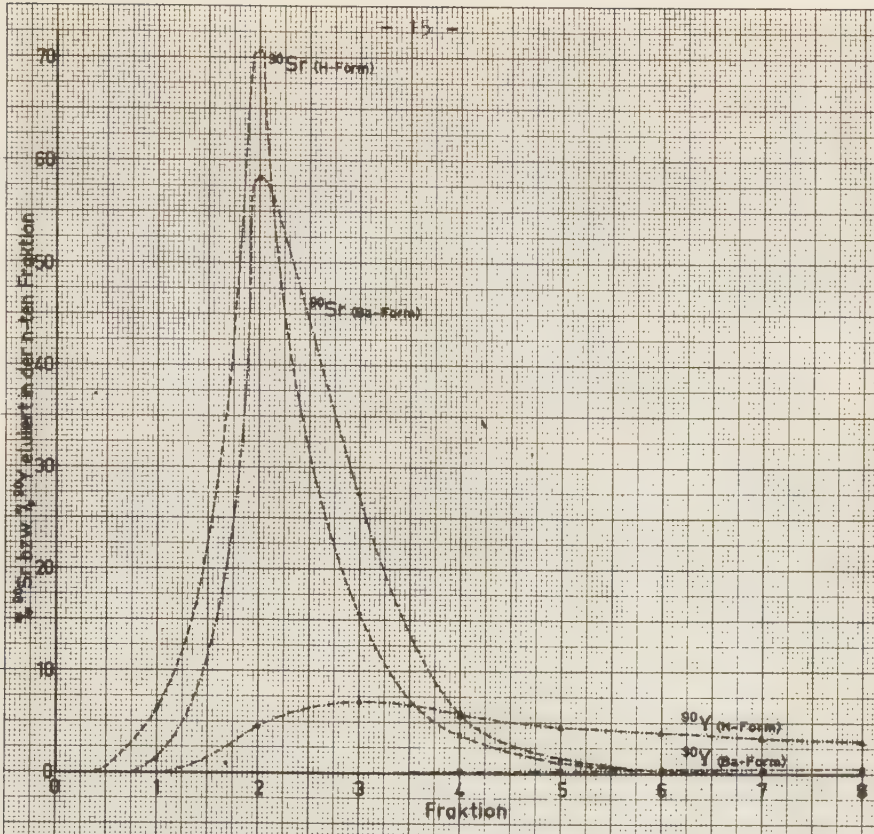
Wie groß der Unterschied dabei sein kann, soll bereits hier an einem Beispiel demonstriert werden:
Trennt man eine $^{90}\text{Sr}/\text{Y}$ -Gleichgewichtslösung an Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung mit 9,0 ml 0,1 n HCl, einmal unter Verwendung der Säureform, zum anderen Mal mit der Ba-Form, so kommt man zu folgenden Ergebnissen:

Form des Austauschers	im Eluat		Verhältnis $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ im Eluat
	% ^{90}Sr	% ^{90}Y	
H-Form	92,41	11,62	7,953 : 1 = 1 : 0,1257
Ba-Form	87,00	0,03	2900 : 1 = 1 : 0,000345

Wendet man die Gleichung 4 auf diesen speziellen Fall an, so erhält man:

$$V_{\text{Ba/H}} = \frac{\text{Sr}_{\text{Ba}} \cdot \text{Y}_{\text{H}}}{\text{Y}_{\text{Ba}} \cdot \text{Sr}_{\text{H}}} = \frac{87,00 \cdot 11,62}{0,03 \cdot 92,41} = 364,7.$$

$\log 364 = 2,56$; d. h., daß man durch Anwendung der Ba-Form des Austauschers gegenüber der Säureform eine Verbesserung des Trennfaktors von über $2 \frac{1}{2}$ Zehnerpotenzen erreicht hat.



Bei diesem Versuch erhielt man in den einzelnen Fraktionen folgende Ausbeuten:

		% eluiert in der n-ten Fraktion							
Fraktion		1	2	3	4	5	6	7	8
H-Form	Sr	6,30	70,84	15,57	3,64	1,05	0,36	0,18	0,09
	Y	0,06	4,56	7,00	5,80	4,61	4,11	3,62	3,21
Ba-Form	Sr	1,33	58,25	27,41	5,51	1,39	0,45	0,27	0,15
	Y	0,00	0,01	0,02	0,22	0,31	0,50	0,48	0,45

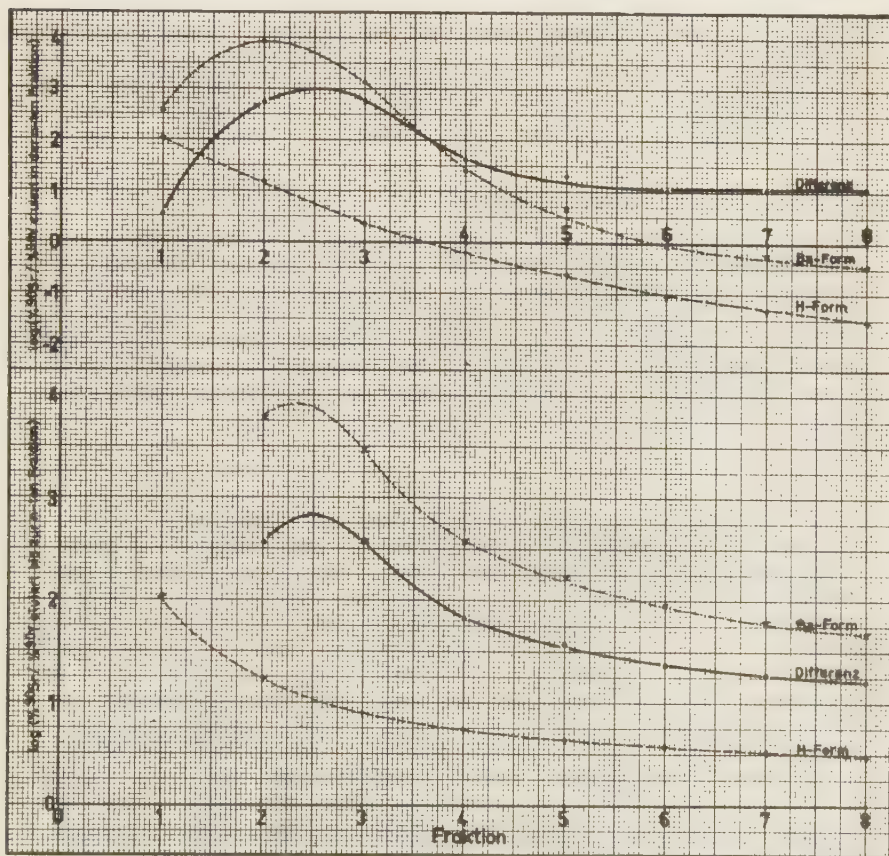
		% eluiert bis zur n-ten Fraktion							
Fraktion		1	2	3	4	5	6	7	8
H-Form	Sr	6,30	76,84	92,41	96,05	97,10	97,46	97,64	97,73
	Y	0,06	4,62	11,62	17,42	22,03	26,14	29,76	32,97
Ba-Form	Sr	1,33	59,58	86,99	92,50	93,89	94,34	94,61	94,76
	Y	0,00	0,01	0,03	0,25	0,56	1,06	1,54	1,99

Diese Ergebnisse sind auf Seite 15 graphisch wiedergegeben.

Da die Maxima der differenziellen Elutionskurven nach verschiedenen Elutionsvolumina erscheinen, ist dieerzielte Reinheit auch eine Funktion des Elutionsvolumens. Für das Erreichen einer optimalen Trennung an einem Austauscher ist daher die Kenntnis des Elutionsverlaufes beider Komponenten Voraussetzung. Es genügt nicht, das Verhältnis zwischen ihnen nach lediglich einem beliebigen Elutionsvolumen zu kennen. Man muß vielmehr bis zu dem Volumen eluieren, bei dem das Verhältnis zwischen den bereits eluierten Anteilen beider Komponenten (Ordinaten der beiden Integralkurven bei gleichem Volumen) einen Maximalwert erreicht hat.

		log (% ⁹⁰ Sr / % ⁹⁰ Y in der n-ten Fraktion)							
Fraktion		1	2	3	4	5	6	7	8
H-Form		2,046	1,190	0,347	0,798	0,359	0,944	0,698	0,449
					-1	-1	-2	-2	-2
Ba-Form		2,574	3,926	3,111	1,408	0,654	0,957	0,754	0,522
							-1	-1	-1
Differenz zwischen H- und Ba-Form		0,528	2,736	2,764	1,610	1,295	1,013	1,056	1,073

	log (% ⁹⁰ Sr / % ⁹⁰ Y bis zur n-ten Fraktion)							
Fraktion	1	2	3	4	5	6	7	8
H-Form	2,021	1,221	0,901	0,742	0,644	0,572	0,516	0,472
Ba-Form		3,775	3,462	2,568	2,224	1,949	1,788	1,678
Differenz zwischen H- und Ba-Form		2,554	2,561	1,826	1,580	1,377	1,272	1,206
			<u>MAX</u>					



Wenn aber in diesem Verhältnis mitunter kein ausgeprägtes Maximum auftritt oder sich dieses ganz am Anfang der Elutionskurve befindet, die Ausbeute der abzutrennenden Komponente also noch zu gering ist, muß man einen Kompromiß zwischen Ausbeute und Reinheit schließen.

Es kann natürlich nicht erwartet werden, daß man in allen Fällen zu solch günstigen Ergebnissen gelangt. An vielen der durchgeführten Versuchen sieht man, daß der Einfluß der Salzformen praktisch nicht auswertbar ist; oft kommt man zu einer Verschlechterung des Trenneffekts. Die Gründe hierfür sind, wie bereits angeführt, die ungünstige Reihenfolge der Affinitäten von Radionukliden und Vorbeladungen zum Austauscher.

Man darf nun jedoch nicht annehmen, daß man aus dem Verhalten der Ionen A und B gegenüber der Salzform M eine quantitative Aussage über das Verhalten der Ionen A gegenüber der Salzform B des gleichen Austauschers machen könnte. Auf Grund thermodynamischer Überlegungen von Gregor und Bregman (17, 18) kann aus den Selektivitätskoeffizienten K_M^A und K_B^M nur unter besonderen Bedingungen auf den Selektivitätskoeffizienten K_A^B geschlossen werden. Bei der Reaktion



ist der Selektivitätskoeffizient

$$K_B^A = \frac{(B/A)_{\text{Aust.}}}{(B/A)_{\text{Lsg.}}}$$

Boyd und Soldano (19) leiteten für organische Ionenaustauscher die Gleichung 5 ab, die aber auch in gewissen Umfang auf anorganische Gele angewendet werden kann:

$$RT \ln K_B^A = \pi (v_A^O - v_B^O) + RT \ln \left(\frac{x_B}{x_A} \right)_{\text{Lsg.}} - RT \ln \left(\frac{f_B}{f_A} \right)_{\text{Aust.}} \quad (\text{Gl. 5}).$$

Dabei bedeuten:

π = Quellungsdruck im Austauscher
 v_A^0, v_B^0 = stöch. part. Molvolumina der Ionen A und B
 γ_A, γ_B = Aktivitätskoeffizienten für A und B in der Lsg.
 f_A, f_B = Aktivitätskoeffizienten für A und B in der
Austauscherphase

In sehr verdünnten Lösungen, um die es sich hier ja weitgehend handelt, wird γ_A und $\gamma_B = 1$ und somit

$$RT \ln \frac{K_A}{K_B} = \pi (v_A^0 - v_B^0) - RT \ln \left(\frac{f_B}{f_A} \right)_{\text{Aust.}} \quad (\text{Gl. 6}).$$

Voraussetzung für eine direkte Übertragung der Ergebnisse wäre, daß sowohl die Quellungsdrucke π als auch die Aktivitätskoeffizienten f in der Austauscherphase in allen Fällen einander gleich wären.

Diese Ableitung bezieht sich zwar auf Gleichgewichtszustände wie sie beim Batch-Verfahren vorliegen. Es kann aber daraus geschlossen werden, daß beim Säulenverfahren mit seiner komplizierteren Kinetik die Verhältnisse nicht so einfach sind, daß aber diese Bedingungen zumindest erfüllt sein müssen.

Wie eingangs schon angeführt, sind von Einfluß auf den Austausch die Eigenschaften des Austauschers, wie Beladungszustand, Kapazität und Korngröße, sowie die Zusammensetzung des Elutionsmittels, die Strömungsgeschwindigkeit, die Temperatur und natürlich die Eigenschaften des auszutauschenden Ions.

Als Elutionsmittel wurde in dieser Arbeit in erster Linie Salzsäure verschiedener Konzentration, daneben aber auch Salzlösungen verwendet. Das Schwerk Gewicht wurde bewußt auf den mineralsauren Bereich gelegt, denn im neutralen oder alkalischen kommt es leicht zur Bildung von Radiokolloiden. Außerdem nimmt mit steigender Basizität die Löslichkeit der Austauscher zu. Gleiche Korngröße des Austauschermaterials

wurde durch aussieben der entsprechenden Fraktion erzielt. Die Strömungsgeschwindigkeit wurde nach Möglichkeit konstant gehalten. Gearbeitet wurde bei Raumtemperatur. Untersucht wurden zwei Austauscher, Mischfällungen von Zirkonphosphat und Zirkonhypophosphat mit Silikat in verschiedenen Beladungszuständen auf ihre Austauschfähigkeit gegenüber den Radionukliden $^{204}\text{Tl}^+$, $^{137}\text{Cs}^+/\text{Ba}^{++}$ und $^{90}\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}$.

Als Beladungsformen wurden neben den reinen Säureformen die beiden Austauscher in der NH_4^+ -, Na^+ -, Ba^{++} - und Y^{+++} -Form gewählt. Es standen also 1 - 3-wertige Radionuklide den mit 1 - 3-wertigen inaktiven Ionen vorbeladenen Austauschern gegenüber. Bei den Versuchen mit den Salzformen der Austauscher wurde so vorgegangen, daß man das anfallende Austauscherprodukt erst 6 Stunden unter Salzsäure der Konzentration stellte, mit der später die Elutionen durchgeführt werden sollten. Die Säureform wurde dann solange mit destilliertem Wasser dekantiert bis keine HCl mehr feststellbar war. Dabei wurde das Granulat gleichzeitig auch von noch anhaftenden staubförmigen Anteilen befreit, die sonst leicht eine Trübung des Eluats hervorrufen können. Nun wurden die Austauscher in die Säulen eingeschlämmt und mit den Ionen behandelt, deren Salzformen hergestellt werden sollten. Es fanden dabei Verwendung: 1 m NaCl-, 1 m NH_4Cl -, 1/2 m BaCl_2 - und 1/3 m YCl_3 -Lösungen. Man ließ jeweils 50 ml dieser Lösungen durch die Säule fließen (Dauer etwa 1/2 Stunde). Durch das hohe Angebot an Metallionen wird das Gleichgewicht in Gleichung 1 ganz auf die rechte Seite verschoben. Nach 6 Stunden wurde die überschüssige Salzlösung ausgewaschen, die Säule mit der in 0,1 n Salzsäure gelösten Aktivität beladen und nach 5 Minuten mit der ersten Elution begonnen.

Nähere Angaben über die Arbeitsmethodik findet man im experimentellen Teil dieser Arbeit.

A. Adsorptionsversuche an reinen Silikatfällungen.

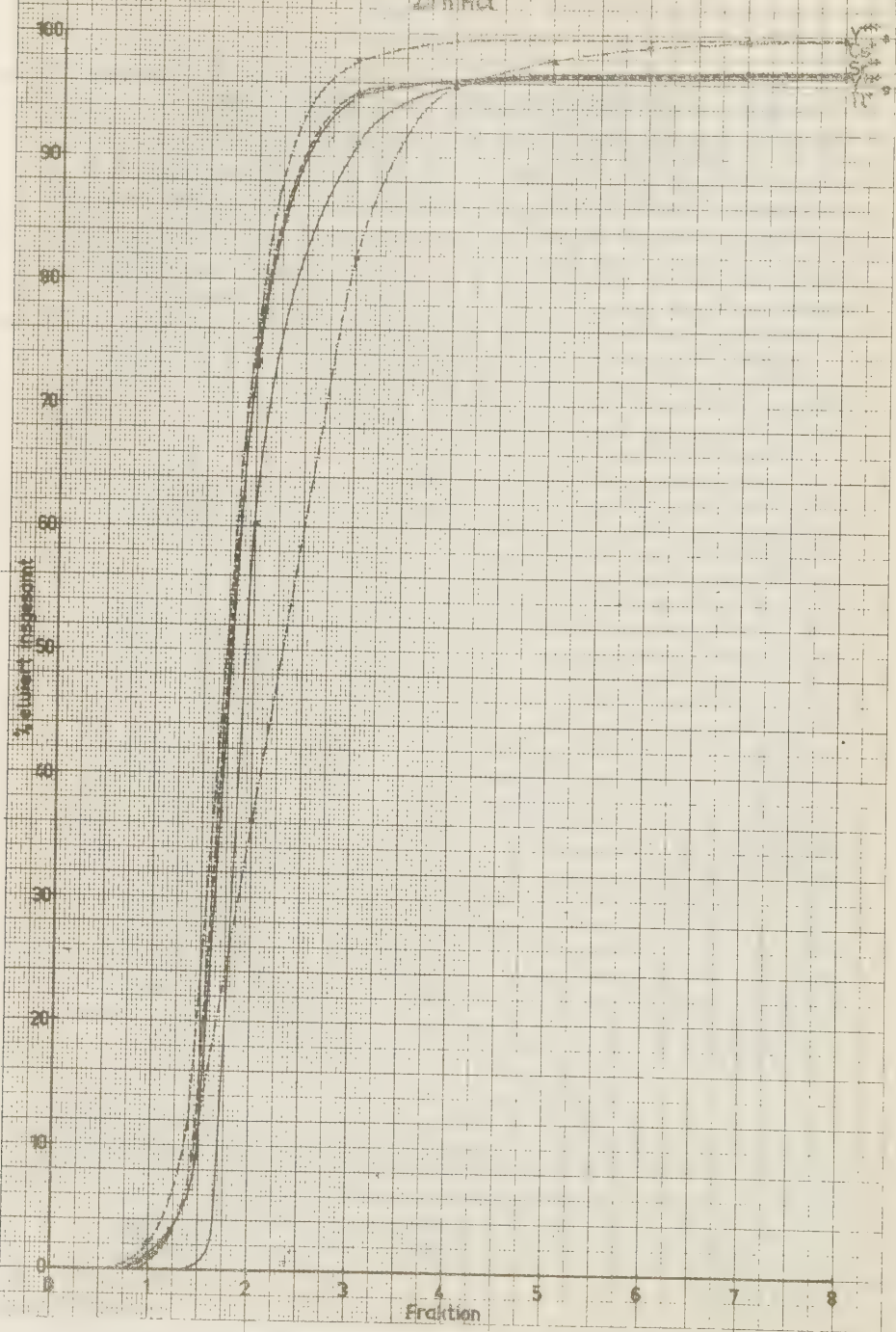
Die Mischfällungen von Zirkonphosphaten mit Silikatmatrix wurden durchgeführt um für die Säulentechnik mechanisch günstigeres Austauschermaterial zu erhalten als es die reinen Phosphate sind, ohne aber die Austauschereigenschaften der Zr-Phosphate zu beeinflussen. Um letzteres zu beweisen, wurde zunächst reine Silikatfällung auf ihr Adsorptionsvermögen gegenüber den verwendeten Radionukliden untersucht. Daß die an den Mischfällungen auftretenden Adsorptionen nur von den Zirkonphosphatkomponenten herrühren, konnte in vollem Umfang bestätigt werden.

Dazu wurde reine Silikat-Fällung (ihre Darstellung wird im experimentellen Teil beschrieben) mit den Radionukliden $^{204}\text{Tl}^+$, $^{137}\text{Cs}^+/\text{Ba}^{++}$ und $^{90}\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}$ beladen und mit 0,1 n, 0,5 n und 2,0 n Salzsäure fraktionsweise eluiert. Bei allen verwendeten HCl-Konzentrationen wurden die Radionuklide bereits in den ersten Fraktionen nahezu 100%ig eluiert (Seiten 22 - 24). Von einer Adsorption im sauren Medium kann also in keiner Weise gesprochen werden. Die von Gestrost (20) beschriebenen Kationenaustauschereigenschaften von Silikatfällungen beziehen sich nur auf den alkalischen Bereich. Deshalb wurden zum Vergleich auch mit $^{137}\text{Cs}/\text{Ba}$ beschickte Silikatsäulen mit 0,1 m und 1,0 m NaCl- und NH_4NO_3 -Lösungen eluiert. Die schwach sauer reagierenden NH_4NO_3 -Lösungen und selbst die 1,0 m NaCl-Lösung eluierten das ^{137}Cs noch weitgehend aus dem Silikat, während bei der 0,1 m NaCl-Lösung nach 8 Fraktionen (= 24 ml Elutionsvolumen) noch ca. 90 % und nach 85 ml immer noch 30 % der eingesetzten Aktivität vom Silikat festgehalten wurden (Seite 25).

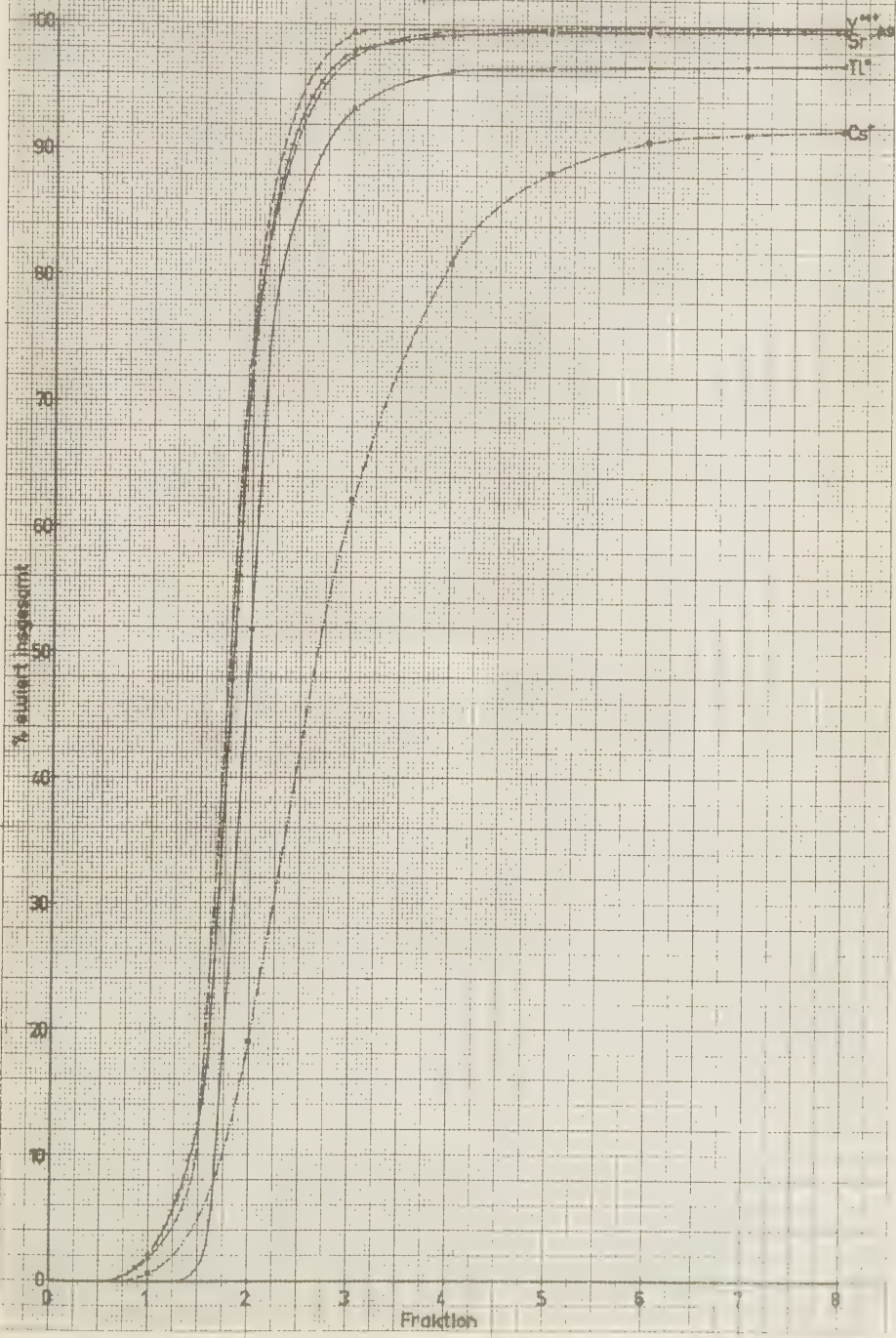
Daraus ist zu ersehen, daß eine deutliche Adsorption der untersuchten Nuklide an Silikatfällungen erst im neutralen Bereich einsetzt, während im sauren das Silikat der Mischfällungen lediglich als Gerüstsubstanz für die Zirkonphosphate dient, deren Austauschereigenschaften aber nicht verfälscht.

22
Silikat

20 n HCl

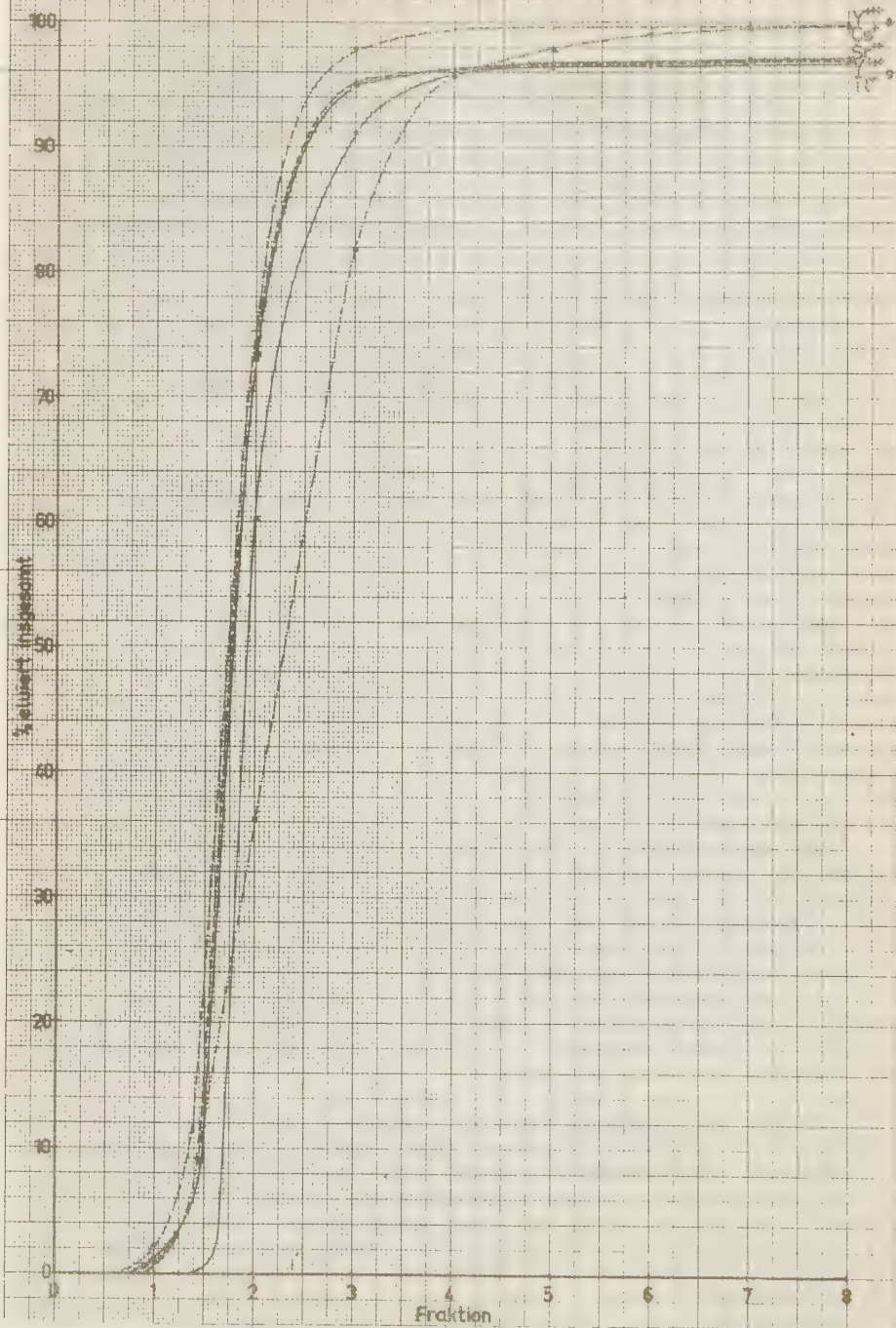


23
Silikat
0.5n HCl

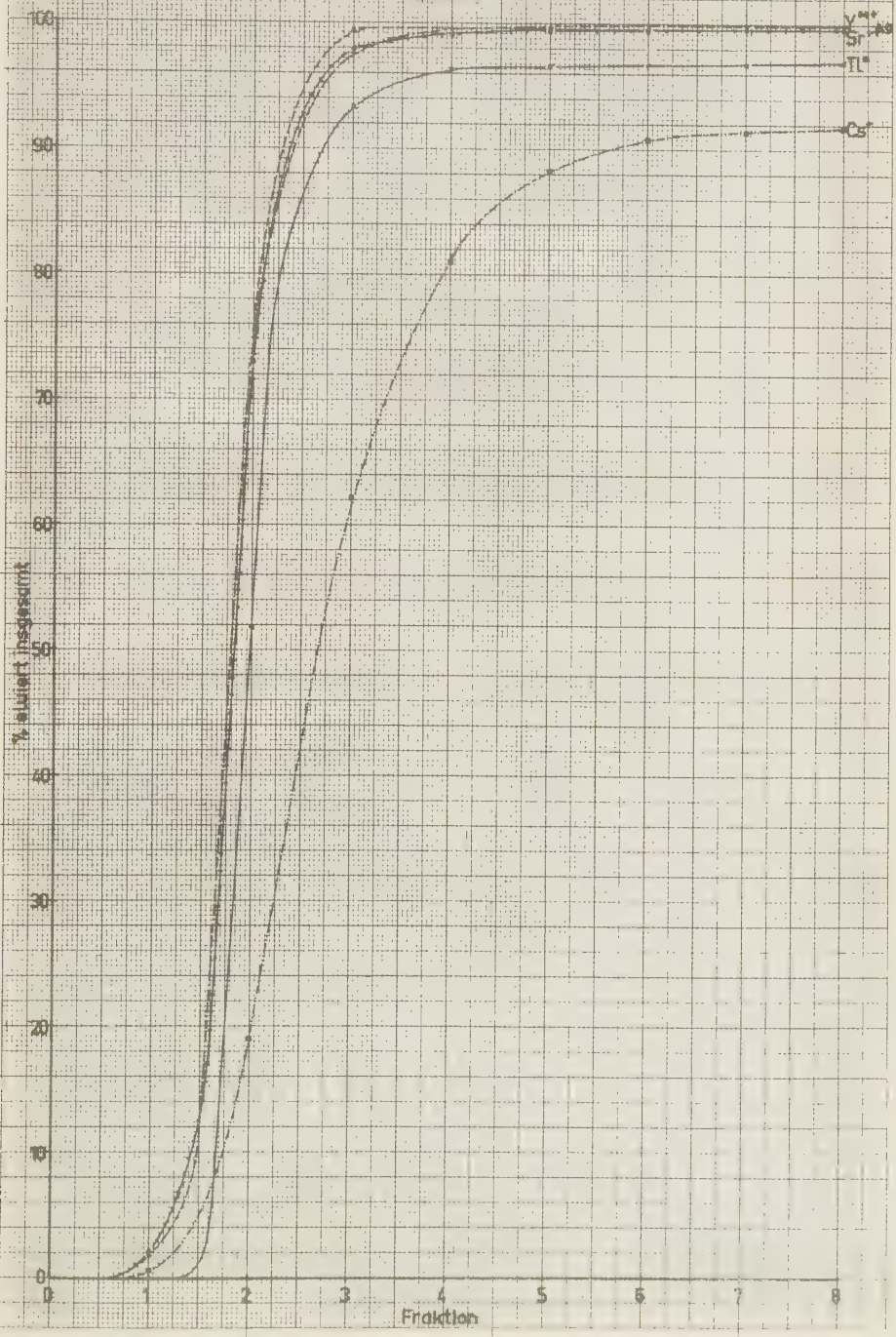


22
Silikat

22 n HCl



23
Silikat
0.5n HCl



B. Versuche mit Zirkonphosphat/Silikat-Mischfällungen und Salzsäure als Elutionsmittel.

Dieser Austauscher, dessen Darstellung im experimentellen Teil dieser Arbeit beschrieben wird, wurde mit den Radionukliden $^{204}\text{Tl}^+$, $^{90}\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}$ und $^{137}\text{Cs}^+/\text{Ba}^{++}$ beladen, mit Salzsäure eluiert und der Elutionsverlauf aufgenommen.

Dazu wurde das Austauschermaterial in die Säulen eingeschlämmt, in die H- oder eine entsprechende Salzform überführt und mit der in 0,1 n HCl gelösten Aktivität beladen. Die Elution begann nach 5 Minuten und erfolgte in 8 Fraktionen zu je 3 ml, wobei für jede Fraktion etwa 0,6 - 0,8 Minuten benötigt wurden. Die Fraktionen wurden dann auf das für die Messungen erforderliche Volumen gebracht und gemessen. Nähere Angaben hierüber sind ebenfalls im experimentellen Teil zu finden.

a) Elution von $^{204}\text{Tl}^+$.

Bei den Elutionen konnte festgestellt werden, daß das $^{204}\text{Tl}^+$ an Zirkonphosphat so fest gebunden ist, daß es mit 0,1 n HCl nicht eluiert werden kann. Im Eluat konnte auch bei einer Vergrößerung des Elutionsvolumens auf 84 ml keine Aktivität festgestellt werden. Dies trifft sowohl auf die H- als auch auf die Salzformen zu. Eine allmähliche Elution setzt erst ein, wenn man die Säurekonzentration vergrößert. Bei 0,5 n Salzsäure konnte man nach 8 Fraktionen erst 1 % der eingesetzten Aktivität, bei 2,0 n HCl dagegen schon ca. 50 % im gleichen Volumen aus der Säule mit der H-Form eluieren. Durch die vorangehende Überführung des Austauschers in die Salzformen kann diese Ablösetendenz noch gesteigert werden, d. h. die Adsorptionsfestigkeit des Tl nimmt an den Salzformen ab. Wie späteren Versuchen zu entnehmen ist, wird Y leichter und Ba noch leichter von der H-Form des Zr-Phosphats als Tl eluiert.

Gang der Adsorptionsfestigkeit des $^{204}\text{Tl}^+$ an verschiedenen Beladungsformen des Zr-Phosphats und die nach 8 Fraktionen (= 24 ml Elutionsvolumen) eluierten Tl-Anteile in % :					
0,1 n HCl	vollständige Adsorption				
0,5 n HCl	H	>	Y	>	Na > Ba = NH ₄
	0,98		2,29		7,95 8,1 8,1
2,0 n HCl	H	>	Na	>	Y > Ba > NH ₄
	51,3		64,9		70,0 77,3 87,7

b) Elution von $^{137}\text{Cs}^+/\text{Ba}^{++}$.

Bei entsprechenden Versuchen mit $^{137}\text{Cs}/\text{Ba}$ mußte zwischen den einzelnen Fraktionen immer eine Stunde gewartet werden um einerseits den Aktivitätsabfall verfolgen zu können; andererseits konnte sich in dieser Zeit in der Säule das radioaktive Gleichgewicht erneut einstellen. Im allgemeinen verhält sich das Cs gegenüber dem Zirkonphosphat ähnlich dem Thallium, wird aber noch fester als dieses adsorbiert. Von 0,1 n HCl wird es praktisch nicht eluiert, lediglich bei der NH_4 -Form konnte nach 24 ml (= 8 Fraktionen) insgesamt 0,06 % der eingesetzten Aktivität in den Eluaten festgestellt werden. Bei 0,5 n HCl tritt bei der H-, Na- und Ba-Form noch immer keine Elution auf. Bei der Y-Form konnte nach dem gleichen Elutionsvolumen 0,3 % abgelöst werden, während bei der NH_4 -Form die Aktivität im Eluat bereits auf über 1 % angestiegen ist. Diese verstärkte Ablösetendenz durch NH_4^+ -Ionen wurde schon von K. A. Kraus (21) für eine Trennung Rb/Cs ausgewertet. Er verwendete allerdings keine mit Ammonium vorbeladenen Säulen, sondern eluierte das an der H-Form des Zirkonphosphats adsorbierte Gemisch mit Ammonchlorid-Lösungen. Das Rb konnte er bereits mit 1 m Lösung quantitativ eluieren, während er für die Ablösung des Cs zu konzentrierter Lösung übergehen mußte.

Bei der H-, Na- und Ba-Form setzt selbst bei 2,0 n HCl (Vers.-Nr.: 2111, 2113 und 2114) erst ganz langsam eine Elution ein, erreicht aber bei den beiden ersteren nach

24 ml nur 0,5 %. Bei der Y-Form (Vers.-Nr.: 2115) nimmt die Ablösetendenz stärker zu als bei der NH_4 -Form und übersteigt diese mit 11,5 % gegenüber 2,0 %.

Gang der Adsorptionsfestigkeit des ^{137}Cs an verschiedenen Beladungsformen des Zr-Phosphats und die nach 8 Fraktionen (= 24 ml Elutionsvolumen) eluierten Cs-Anteile in % :					
0,1 n HCl	vollständige Adsorption				
0,5 n HCl	H, 0,00	Na, 0,03	Ba > Y 0,05 0,30	NH_4 1,06	
2,0 n HCl	H, 0,5	Na > Ba 0,5 1,2	NH_4 > Y 2,0 11,5		

Bei den eluierten Ba-Anteilen muß berücksichtigt werden, daß die Elutionen immer nach erneuter Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts erfolgten, sie also immer wie eine 1. Fraktion zu betrachten sind und dementsprechend nicht addiert werden können. Während bei allen Austauschformen die Ba-Ausbeute in der 1. Fraktion noch relativ klein ist, steigt diese bei den weiteren sehr schnell an. Dabei schwanken die Werte bei 0,1 n HCl zwischen 5 und 14 %, bei 0,5 n HCl zwischen 7 und 24 % und bei 2,0 n HCl zwischen 16 und 26 %. Dies sind Werte, wie sie sonst von keinem Nuklid in der ersten Fraktion erreicht werden. Die Adsorptionsfestigkeit des Ba ist also äußerst gering. Bei den einzelnen Salzformen des Zr-Phosphats ist folgender Gang der Adsorptionsfestigkeit gegenüber Barium festzustellen:

0,1 n HCl	H > Ba > Na > Y > NH_4
0,5 n HCl	H > Na > Ba > Y > NH_4
2,0 n HCl	H > Na > NH_4 > Ba > Y

Die umgekehrte Richtung gibt die Zunahme der Ba-Ausbeute an.

Da die Cs-Ausbeute stärker von der Säurekonzentration abhängt als die Ba-Ausbeute, nimmt die radiochemische Verun-

reinigung des Bariums mit steigender Säurekonzentration zu. Sie beträgt bei 0,1 n HCl fast durchwegs weniger als 0,1 %, bei der H-Form sogar nur 0,01 % (Vers.-Nr.: 2131). Höhere Werte wurden nur in der 1. Fraktion der NH_4 - und Na-Form (Vers.-Nr.: 2132 und 2133) berechnet. In beiden Fällen war die Ba-Elution gegenüber den anderen Salzformen verzögert. Bei Verwendung von 0,5 n HCl nimmt die Verunreinigung bei der H-, Na- und Ba-Form nur unwesentlich zu. Dagegen steigt sie durch die bereits hier einsetzende Cs-Elution an der Y- und NH_4 -Form (Vers.-Nr.: 2125 und 2122) merklich an. Bei 2,0 n Salzsäure entspricht der Gang der Verunreinigung auch wieder dem der Cs-Ausbeute. Sie beträgt aber bei der H- und Na-Form (Vers.-Nr.: 2111 und 2113) immer noch weniger als 1 %, bei der Ba- und NH_4 -Form knapp darüber und steigt nur bei der Y-Form (Vers.-Nr.: 2115) auf etwa 8 % an.

Insgesamt kann aus den Adsorptionsversuchen von Cs/Ba an den verschiedenen Beladungsformen des Zirkonphosphats folgendes Ergebnis abgeleitet werden:

Für eine Abtrennung des $^{137}\text{Ba}^{\text{m}}$ von seiner Muttersubstanz ^{137}Cs eignet sich am besten die H-Form des Austauschers mit 0,1 n HCl als Elutionsmittel. Darüber hinaus können aber bei Verwendung von 0,1 n und 0,5 n HCl alle hier untersuchten Beladungsformen und bei 2,0 n die H- und Na-Form gut, die Ba- und NH_4 -Form bedingt, für eine Abtrennung des Cs von anderen Ionen verwendet werden. Das unter den gegebenen Bedingungen eluierte Barium ist nach spätestens 20 Halbwertszeiten (= 52 Minuten) auf 1 ppm zerfallen und stört nicht mehr.

c) Elution von $^{90}\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}$.

Bei den Adsorptionsversuchen mit $^{90}\text{Sr}/\text{Y}$ wurde nach zwei Methoden vorgegangen: einmal wurden die Säulen mit der Gleichgewichtslösung beladen, zum anderen Male wurde durch Extraktion reines Yttrium hergestellt und dessen Adsorptionsfestigkeit gemessen. Bei Messungen von $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Lösungen mit Geiger-Müller-Zählrohren ist zu berücksichtigen, daß das ^{90}Sr und das ^{90}Y wegen des großen Unterschieds ihrer Zerfallsenergien ungleich registriert werden ($E_{\beta\text{max}} = 0,54 \text{ MeV}$ für ^{90}Sr , $E_{\beta\text{max}} = 2,28 \text{ MeV}$ für ^{90}Y). Hoyer (22) bestimmte den unter den gegebenen Bedingungen auf das ^{90}Sr entfallenden Anteil auf etwa 9,5 % der Gesamtzählrate einer Gleichgewichtslösung. Nach noch nicht veröffentlichter Mitteilung des gleichen Autors ergaben neuere Messungen 10,5 %. Zur Bestimmung der adsorbierten Sr- und Y-Anteile wurde so vorgegangen, daß die Anfangs- und Endaktivität (nach 27 Tagen = $10 \tau_{\text{Y}}$) der Eluate gemessen wurden. Den Prozentsatz an eluiertem Sr erhält man direkt aus dem Verhältnis zwischen den Zählraten der Endaktivität und der aufgegebenen Aktivität (in beiden Fällen handelt es sich ja um Gleichgewichtslösungen!); den an eluiertem Yttrium bekommt man aus dem Verhältnis zwischen der um den Sr-Anteil (10,5 % des Endwertes) verminderten Anfangszählrate und 89,5 % der Zählrate der aufgegebenen Aktivität (= Y-Anteil).

Aus der Berechnung des Yttriums ersieht man, daß beim Sr auftretende Schwankungen oder ein Fehler sich sehr stark auf den Y-Wert auswirken. Deshalb wurden zur Kontrolle die Versuche mit reiner Y-Lösung durchgeführt. Hierbei ist dann der adsorbierte Y-Anteil gleich dem Verhältnis zwischen eluierter Aktivität und der auf den Zeitpunkt der Elution bezogenen aufgegebenen Aktivität. Hergestellt wurde diese reine Yttrium-Lösung durch Extraktion mit einer benzolischen Lösung von Thenoyltrifluoraceton (TTA) nach Hoyer (22). Die Methode wird im experimentellen Teil näher beschrieben.

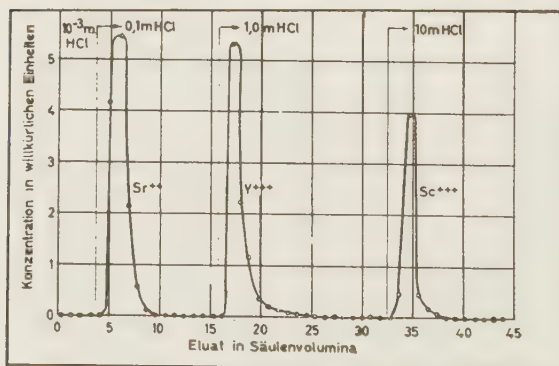
Vergleicht man die Ergebnisse der beiden Reihen beim Y (siehe Tabellenteil Seite 80 - 86, letzte und vorletzte Spalte), so kommt man zu einer weitgehenden Übereinstimmung der Werte. Die in einigen Fällen durch den steilen Anstieg der integralen Elutionskurven bedingten kleineren Abweichungen ändern nicht den Charakter der Kurven. Bei Verwendung von 2,0 n Salzsäure tritt allgemein eine sehr schnelle Elution auf (Vers.-Nr.: 3111 - 3115, 4111 - 4115, 5111 - 5115). Bereits nach zwei Fraktionen (= 6 ml) wird in allen Fällen mehr als die Hälfte und nach 5 Fraktionen (= 15 ml) über 90 % des Yttriums eluiert. Eluiert man mit 0,5 n HCl, so ist lediglich bei der H-Form eine stärkere Verzögerung der Elution festzustellen. Bei 0,1 n HCl erstreckt sich diese auch auf die Salzformen mit Ausnahme der Y-Form. Daß bei der Y-Form auch bei Verwendung von 0,1 n HCl nach 24 ml Elutionsvolumen immer noch 90 % eluiert werden, ist leicht erklärlich, sind doch zwischen den Isotopen des Yttriums keine Affinitätsunterschiede zu erwarten. Die austauschaktiven Stellen des Zirkonphosphats sind und bleiben vom inaktiven Yttrium besetzt, und das ^{90}Y fließt durch die Säule, ohne daß eine merkliche Austauschreaktion erfolgen kann.

Gang der Adsorptionsfestigkeit des ^{90}Y an verschiedenen Beladungsformen des Zr-Phosphats und die nach 8 Fraktionen (= 24 ml Elutionsvolumen) eluierten Y-Anteile in %:						
0,1 n HCl	H	>	Ba	>	NH_4	> Na > Y
a)	60,7		75,5		75,6	78,2 91,6
b)			70,5		75,3	78,1 90,5
0,5 n HCl	H	>	Ba	>	NH_4	> Na > Y
a)	71,3		95,6		96,3	96,4 98,7
b)	83,8		94,9		94,9	96,2 97,7
2,0 n HCl	H	>	Ba	>	NH_4	> Na > Y
a)	94,3		96,1		98,1	97,1 99,0
b)	93,4		95,5		96,5	96,7 98,3
a)	Werte aus den Versuchen mit abgetrennter Yttrium-Lösung.					
b)	Werte aus den Versuchen mit Sr/Y-Gleichgewichtslösung.					

Das Sr wird noch schwächer als das Y am Zirkonphosphat und seinen Salzformen gebunden. Es kommt bei allen drei angewandten HCl-Konzentrationen praktisch zu keiner Adsorption. Diese Eigenschaft des Sr steht in guter Übereinstimmung mit dem in der gleichen Gruppe des Periodensystems folgenden Barium. Zwar sind geringe Unterschiede in der Elutionsgeschwindigkeit festgestellt worden und seien der Vollständigkeit wegen hier angeführt, doch sind diese Reihen nur mit äußerster Vorsicht zu betrachten.

Vermutlicher Gang der Adsorptionsfestigkeit des ^{90}Sr an verschiedenen Beladungsformen des Zr-Phosphats und die nach 8 Fraktionen (= 24 ml) eluierten Sr-Anteile in %:					
0,1 n HCl	H, 95,4	NH_4 95,3	Na 96,3	> Ba 96,7	> Y 96,8
0,5 n HCl	H 95,7	> Na > NH_4		> Ba 97,2	> Y 97,9
2,0 n HCl	H 96,1	> Na 97,0		> Ba 97,9	> NH_4 99,2 > Y 99,4

Aus den über die Adsorptionseigenschaften des Zirkonphosphats gegenüber Sr und Y durchgeführten Versuchen kann gefolgert werden, daß sich die Zr-Phosphat-Mischfällung für eine Trennung dieser beiden Radionuklide nicht eignet.



Phillips und Kraus (23) beschreiben zwar eine Trennung von $\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}/\text{Sc}^{+++}$ an einer Zr-Phosphatsäule mit 0,1 n / 1,0 n / 10,0 n HCl (siehe nebenstehende Abbildung).

Es handelte sich dabei aber um reines Zirkonphosphat, und um eine Verstopfung der Säulen zu verhindern, wurden deren Abmessungen entsprechend klein gehalten ($0,19 \text{ cm}^2$ Querschnitt; 2,8 cm Höhe).

Es zeigte sich außerdem, daß die Austauschigenschaften bei gleichen Herstellungsbedingungen von Ansatz zu Ansatz Schwankungen aufweisen können. Deshalb wurden die in dieser Arbeit angeführten Versuche immer nur mit Austauschermaterial vom gleichen Ansatz durchgeführt.

Bei der untersuchten Zirkonphosphat/Silikat-Mischfällung ist bei Verwendung zur Abtrennung von Ionen, die an ihr gut adsorbiert werden (z. B. Cs oder Tl), mit einer praktisch 100 %-igen Ausbeute der eingesetzten Sr/Y-Aktivität zu rechnen, ohne daß allzu große Elutionsvolumina benötigt werden. Welcher Beladungsform man dabei den Vorzug geben soll um eine möglichst vollständige Abtrennung eines Nuklids aus einer Sr/Y-Lösung zu erzielen, wird in erster Linie von dessen Adsorptionseigenschaften bestimmt. Z. B. wird man bei einer Abtrennung von Cs oder Tl die H-Form wählen, da diese gegenüber den beiden einwertigen Ionen die besten Adsorptionseigenschaften aufweist. Wird dagegen Wert auf eine möglichst vollständige Entfernung des Sr/Y aus der Säule gelegt um bei einer anschließenden Elution ein Nuklid möglichst rein zu erhalten, so ist die Y-Form des Zirkonphosphats vorteilhafter.

C. Versuche mit Zirkonhypophosphat/Silikat-Mischfällungen
und Salzsäure als Elutionsmittel.

Mit diesem Austauscher, seine Darstellung wird ebenfalls im experimentellen Teil der Arbeit beschrieben, wurden die analogen Versuche unternommen wie mit dem Zr-Phosphat-Austauscher. Das Tl und das Cs werden am Zr-Hypophosphat weitaus schwächer gebunden als am Zr-Phosphat, Y dagegen stärker, während Sr und Ba wieder praktisch nicht adsorbiert werden.

a) Elution von $^{204}\text{Tl}^+$.

Tl wird von 0,1 n HCl in den ersten Fraktionen nur sehr zögernd eluiert. Ab der 5. Fraktion steigt bei der H-, Na- und Ba-Form die Aktivität im Eluat erheblich an (Ver.-Nr.: 1211, 1213, 1214). Dies deutet darauf hin, daß die Einstellungsgeschwindigkeit des Austauschgleichgewichts in jeder Schicht der Säule zu klein ist gegenüber der Elutionsgeschwindigkeit, das abgelöste Tl also nicht mehr die Möglichkeit hat, in einer tieferen Schicht wieder adsorbiert zu werden. Bei höherer HCl-Konzentration ist dieser Effekt nicht mehr zu beobachten. Die Elution setzt gleich am Anfang ein und ist auch viel stärker. Nur bei der Y-Form ist kaum eine pH-Abhängigkeit festzustellen. Selbst bei 2,0 n HCl wird lediglich bis zur 4. Fraktion 5 % Tl eluiert, die restlichen 95 % bleiben dagegen bei weiterer Elution fest adsorbiert. (Vers.-Nr.: 1215). Bei der H-Form und den übrigen Salzformen werden unter sonst gleichen Bedingungen mehr als 80 % eluiert (Vers.-Nr.: 1211 - 1214). Erheblich schwächer ausgeprägt ist dieser Effekt allerdings auch bei der NH_4 -Form feststellbar. Bei ihr wird bei Elution mit 2,0 n HCl bis zur 5. Fraktion etwa 80 % des eingesetzten Tl eluiert. Dieser Wert wird aber bei weiterer Elution kaum noch überschritten (Vers.-Nr.: 1212).

Da sich bei der Y-Form das Ergebnis einwandfrei reproduzieren ließ, wurden zwei Umkehrungen des Versuchs durchgeführt:

- 1) Eine Zr-Hypophosphatsäule wurde wie üblich erst unter Salzsäure gestellt, neutral gewaschen und anschließend mit einer 0,1 m Tl_2SO_4 -Lösung behandelt. Nach 2 Stunden wurde die im Zwischenraumvolumen befindliche Tl-Lösung mit 60 ml destilliertem Wasser ausgewaschen (bis sich im Eluat mit Cl^- kein Niederschlag mehr bildete) und mit abgetrenntem ^{90}Y beladen. Der Elutionsverlauf (Vers.-Nr.: 5216) entsprach weitgehend dem der NH_4 -Form (Vers.-Nr.: 5212), zeigte also keine außergewöhnlichen Adsorptionseigenschaften für Yttrium.
- 2) Eine Zirkonhypophosphat-Säule in der H-Form wurde mit einem Gemisch von abgetrenntem ^{90}Y und ^{204}Tl bekannter Aktivitäten beladen, mit 2,0 n HCl eluiert und sowohl direkt nach Elutionsende als auch nach 27 Tagen (10 t_Y) gemessen. Aus der Endaktivität erhält man den eluierten Tl-Anteil, aus der Differenz zur Aktivität nach Elutionsende den Y-Anteil. Zum Unterschied von der Tl-Adsorption an der Y-Form des Zr-Hypophosphats wurde hier bei der gleichzeitigen Beladung der H-Form mit Tracermengen von ^{204}Tl und ^{90}Y keine außergewöhnliche Tl-Adsorption festgestellt. Die geringen Konzentrationen an ^{90}Y reichen demnach nicht aus, um die gleiche Reaktion wie die Makromenge inaktiven Yttriums auf das Tl auszuüben. Derartige Unterschiede im Verhalten von Makromengen und radioaktiven Tracern des gleichen Elements wurden schon öfters festgestellt; so schreibt Gleu (24):

"An sich ist der Ionenaustausch allgemein durch einen konstanten Verteilungsfaktor γ gekennzeichnet, der unabhängig von den Absolutkonzentrationen ist, so daß radiochemische Trennungen an Ionenaustauschern genau so verlaufen sollten wie Makromengen in einiger Entfernung von der Sättigung des Austauschers. In einer großen Zahl von Beispielen ist dieser Sachverhalt experimentell bestätigt worden. Das schließt nicht aus, daß im Sonderfall bei extrem niedriger Konzentration doch wesentliche Abweichungen auftreten können."

Aus diesem Verhalten muß angenommen werden, daß die aktiven Tl-Ionen die durch die Ablösung der Y-Ionen freierwerdenden Plätze an den Gegenionen wesentlich leichter einnehmen können als die mit H-Ionen besetzten der Säureform. Sind nur Tracermengen an ^{90}Y vorhanden, so ist die Wahrscheinlichkeit zu gering, als daß die wenigen Tl-Ionen gerade an diese Stellen gelangen. Hinzu kommt noch, daß das ^{90}Y im Gegensatz zu der im neutralen Medium hergestellten Y-Form des Austauschers, in 0,1 n HCl aufgegeben wurde und daher erst gar nicht fest gebunden wird, wie aus dem Elutionsverlauf des ^{90}Y an der H-Form des Zr-Hypophosphats festgestellt werden kann (Vers.-Nr.: 6211 und 1211).

Abgesehen von der schwächeren Adsorptionsfestigkeit des Tl an Zr-Hypophosphat gegenüber der an Zr-Phosphat unterscheiden sie sich auch im Einfluß der Vorbeladung. Während beim Zirkonphosphat die Adsorptionsfestigkeit des Tl in der Reihenfolge $\text{H} > \text{Na} > \text{Y} > \text{Ba} > \text{NH}_4$ abnahm, ist beim Zr-Hypophosphat folgender Gang festzustellen:

Gang der Adsorptionsfestigkeit des $^{204}\text{Tl}^+$ an verschiedenen Beladungsformen des Zr-Hypophosphats und die nach 8 Fraktionen (= 24 ml Elutionsvolumen) eluierten Tl-Anteile in % :				
0,1 n HCl	$\text{NH}_4 > \text{Y} >$	$> \text{H} > \text{Na} > \text{Ba}$		
	0,18 1,67	14,4 31,4 42,8		
0,5 n HCl	$\text{Y} > \text{NH}_4 > \text{H} > \text{Na}, \text{Ba}$			
	4,5 78,2 88,5 98,6 98,9			
2,0 n HCl	$\text{Y} > \text{NH}_4 > \text{H} > \text{Na}, \text{Ba}$			
	5,1 80,5 98,7 99,5 99,2			

b) Elution von $^{137}\text{Cs}^+/\text{Ba}^{++}$.

Stärker als beim Tl nimmt die Adsorptionsfestigkeit des Cs am Zr-Hypophosphat gegenüber der am Zr-Phosphat ab. Mit 2,0 n HCl ist nach 8 Fraktionen (= 24 ml) die Elution bei allen Beladungsformen (Vers.-Nr.: 2211 - 2215) nahezu 100 %-ig. Beim Zr-Phosphat waren es bei 2,0 n HCl maximal

11,5 % bei der Y-Form (Vers.-Nr.: 2115). Bei 0,5 n Salzsäure werden bei gleichem Elutionsvolumen von der Y-Form immer noch 100 % eluiert (Vers.-Nr.: 2225); bei den anderen Formen geht die Aktivität im Eluat auf ca. 80 % zurück (Vers.-Nr.: 2221 - 2224). Ja selbst bei 0,1 n HCl schwanken die Werte noch zwischen 8 und 66 % (Vers.-Nr.: 2231 - 2235).

Zum Unterschied vom Zr-Phosphat eignet sich deshalb das Zr-Hypophosphat trotz seiner geringen Adsorptionsfestigkeit gegenüber dem Ba nicht zu einer Trennung Cs/Ba. Der auf die Zählrate zu Elutionsende bezogene Gleichgewichtsanteil im Eluat beträgt fast immer über 10 %, steigt aber bei 2,0 n HCl z. T. bis auf über 90 % an. Zr-Hypophosphat und seine Beladungsformen sind aber auch unbrauchbar für eine Abtrennung des Caesiums von anderen Nukliden, da es weder gutes Adsorptionsvermögen besitzt noch die untersuchten Nuklide von ihm besonders schnell eluiert werden.

Gang der Adsorptionsfestigkeit des ^{137}Cs an verschiedenen Beladungsformen des Zr-Hypophosphats und die nach 8 Fraktionen (= 24 ml Elutionsvolumen) eluierten Cs-Anteile in %:

0,1 n HCl	Na	>	Ba	>	H	>	NH ₄	>	Y		
	8,1		15,5		19,0		21,6		66,5		
0,5 n HCl			Ba	>	H	>	Na	>	NH ₄	>	Y
			80,1		81,1		82,6		85,8		100
2,0 n HCl			Ba	>	H	>	Na	>	NH ₄	>	Y
			84,1		96,9		100		100		100

c) Elution von $^{90}\text{Sr}^{++}/\text{Y}^{+++}$.

Das Zr-Hypophosphat ist für eine Trennung des Sr/Y-Gleichgewichts wesentlich besser geeignet als das Zr-Phosphat. Während die meisten Sr/Y-Trennungen darauf beruhen, daß das Y durch einen Komplexbildner gebunden wird (z. B. mit TTA), das Sr aber keinen Komplex bildet, und man dadurch das Yttrium rein erhält, ist hier die Situation gerade um-

gekehrt: man erhält reines Sr. Dabei ist es nicht so, daß etwa das Sr einen negativ geladenen Chlorokomplex bilden würde und dadurch vom Kationenaustauscher nicht adsorbiert wird. Es wird hier lediglich die allgemeine Regel befolgt, daß das höherwertige Ion (Y^{+++}) stärker adsorbiert wird als das niedriger geladene (Sr^{++}).

Sr wird wieder wie beim Zr-Phosphat von Salzsäure aller verwendeten Konzentrationen sehr schnell eluiert; es verhält sich analog zum Barium. Schon bei 24 ml 0,1 n HCl wird bei allen Beladungsformen über 94 % des eingesetzten Sr eluiert (Vers.-Nr.: 3231 - 3235). Bei ansteigender HCl-Konzentration kann die Ablösegeschwindigkeit nur noch bei der NH_4 -, Na- und Ba-Form in den ersten Fraktionen etwas gesteigert werden.

Größeren Einfluß auf die Elution kann man durch Änderung der HCl-Konzentration und Wahl der Beladungsform bei Yttrium ausüben. Bei Verwendung von 2,0 n HCl wird das Y zwar auch weitgehend eluiert, und man kommt zu keiner wesentlichen Abtrennung. Bei 0,5 n HCl macht sich aber bei Y bereits eine Adsorption am Zr-Hypophosphat bemerkbar. Sie steigt bei 0,1 n HCl so stark an, daß bei diesen Bedingungen eine gute Trennung der Gleichgewichtslösung zu erzielen ist.

Gang der Adsorptionsfestigkeit des ^{90}Y an verschiedenen Beladungsformen des Zr-Hypophosphats und die nach 8 Fraktionen (= 24 ml) eluierten Y-Anteile in %:					
0,1 n HCl	Ba	$> NH_4$	$> H$	$> Na$	$> Y$
a)	2,6	6,1	12,6	13,3	72,5
b)	2,0	6,0	33,0	12,7	72,1
0,5 n HCl	Ba	$> H$	$> Na$	$> NH_4$	$> Y$
a)	65,9	72,8	74,6	75,3	96,3
b)	67,3	73,9	75,0	75,1	96,1
2,0 n HCl	Ba	$> H$	$> Na$	$> NH_4$	$> Y$
a)	86,9	92,3	93,3	96,1	96,8
b)	87,3	89,6	95,7	96,0	96,3
a)	Werte aus den Versuchen mit abgetrennter Yttrium-Lösung.				
b)	Werte aus den Versuchen mit Sr/Y-Gleichgewichtslösung				

Bei 0,1 n HCl trat an der H-Form ein größerer Unterschied zwischen beiden Versuchsreihen auf. Wegen der besseren Genauigkeit der Methode a wurde deren Reihenfolge berücksichtigt.

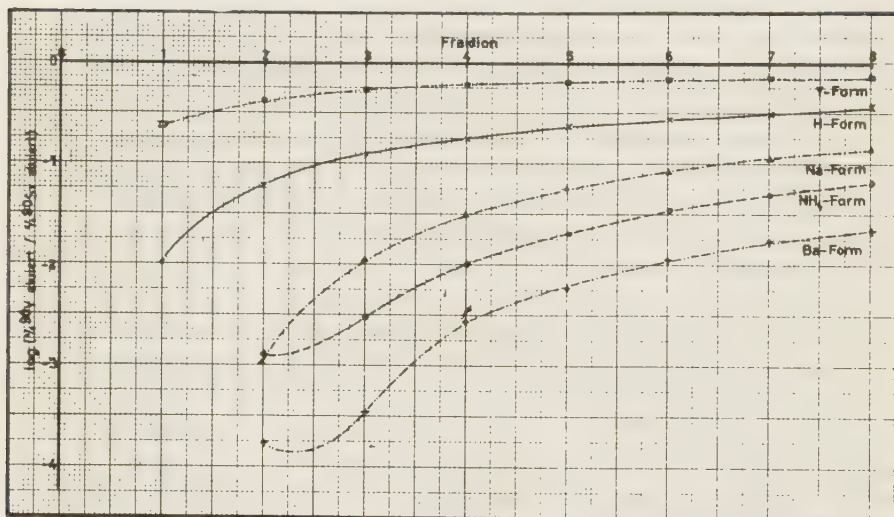
Für die Reihenfolge der Adsorptionsfestigkeit des ^{90}Sr an Zr-Hypophosphat gilt das an der entsprechenden Stelle beim Zr-Phosphat Gesagte (Seite 32) ebenfalls: Die Unterschiede sind zu gering, um zu einer eindeutigen Aussage zu kommen. Schon kleinste Schwankungen in den Werten verursachen unvermeidlich Überschneidung der dicht nebeneinander liegenden Kurven.

Vermutlicher Gang der Adsorptionsfestigkeit des ^{90}Sr an verschiedenen Beladungsformen des Zr-Hypophosphats und die nach 8 Fraktionen (= 24 ml) eluierten Sr-Anteile in %:						
0,1 n HCl	NH_4 94,2	> Ba 94,8	> Na 95,1	> Y 96,3	> H 97,7	
0,5 n HCl	NH_4 96,3		> Na 96,5	> Y 97,2	Ba > H 97,2 98,5	
2,0 n HCl	NH_4 96,5		> Na 96,7	Y, > 96,6	Ba > H 97,7 98,6	

Da die Adsorptionsfestigkeit des Y stärker beeinflussbar ist als die des Sr, ist für eine Trennung von Mutter- und Tochtersubstanz der Austauscher zu wählen, der die stärkste Adsorptionsfestigkeit gegenüber dem Y aufweist. Dies ist die Ba-Form des Zr-Hypophosphats bei Elution mit 0,1 n Salzsäure. Man kommt so zu dem auf Seite 14 angeführten Beispiel.

In dem auf Seite 40 folgenden Diagramm ist der Logarithmus des Verhältnisses zwischen eluiertem Y- und Sr-Anteil für die verschiedenen Beladungsformen des Zr-Hypophosphats bei Elution mit 0,1 n HCl in Abhängigkeit vom bereits erreichten Elutionsvolumen dargestellt. Es ist zu ersehen, daß die Reinheit des Sr durch eine Vergrößerung des Elutionsvolumens über 7 ml wieder abnimmt, da die noch erzielte Vergrößerung der Sr-Ausbeute durch die bereits einsetzende Y-Elution über-

kompensiert wird. Deshalb muß die Elution rechtzeitig, spätestens nach der 3. Fraktion, abgebrochen werden.



Es gelang nicht, das Strontium zu adsorbieren, obzwar es als zweiwertiges Ion nach den allgemeinen Regeln des Ionenaustauschs fester adsorbiert sein müßte als die einwertigen Ionen ^{137}Cs und ^{204}Tl . Zum Sr analog wurde auch immer das zur gleichen Gruppe des Periodensystems gehörende ^{137}Ba eluiert, während seine einwertige Muttersubstanz ^{137}Cs z. T. extrem gut adsorbiert wurde.

Wiesner (25) zeigte zwar am System $\text{Na}^+/\text{Zn}^{++}$, daß bei schneller Elution auch das einwertige Na-Ion wegen seiner größeren Diffusionsgeschwindigkeit bevorzugt adsorbiert wird, während das zweiwertige Zn-Ion ins Eluat gelangt, daß aber bei genügend großer Verweilzeit das langsamere Zn^{++} adsorbiert wird, bzw. dieses bei Erschöpfung der Kapazität das primär adsorbierte Na^+ von den restionen verdrängt. Ein derartiges Verhalten konnte weder bei Sr noch bei Ba festgestellt werden, wie groß die Verweilzeit auch gewählt wurde. Es handelt sich

hierbei vielmehr um eine ausgesprochen spezifische Adsorptionseigenschaft des Zr-Phosphats und des Zr-Hypophosphats. Ähnlich verhält sich das Cs/Ba auch gegenüber dem NH_4 -Salz der Phosphormolybdänsäure; dieses adsorbiert das Cs, während man das Ba eluieren kann.

Allgemein kann gesagt werden, daß bei Zr-Phosphat die H-Form immer die größte, die Y-Form fast immer die kleinste Adsorptionsfestigkeit bei sonst gleichen Bedingungen gegenüber den untersuchten Radionukliden aufweist. Na-, Ba- und NH_4 -Form liegen dazwischen. Letztere ändert ihre Adsorptionseigenschaften meist stärker als die anderen Beladungsformen, wenn die HCl-Konzentration geändert wird. Diese Eigenschaft ruft bei fast allen Nukliden Überschneidungen in der Reihenfolge der integralen Elutionskurven hervor. Bei Zr-Hypophosphat nimmt die H-Form nicht diese bevorzugte Stellung ein. Bei allen untersuchten Nukliden wird sie durch Salzformen übertroffen. Überraschend ist der fast genau umgekehrte Einfluß auf die sich sonst sehr ähnlich verhaltenden Nuklide ^{137}Cs und ^{204}Tl ; dagegen verhalten sich die Beladungsformen fast gleich gegenüber Cs und Y.

D. Elutionsversuche mit Salzlösungen.

Kraus, Phillips, Carlson und Johnson (26) fraktionierten Alkalimetalle von Zr-Phosphat mit NH_4Cl -Lösungen unterschiedlicher Konzentration. Unsere Untersuchungen zeigten, daß ^{137}Cs auch von Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällungen mit NH_4NO_3 -Lösungen eluiert wird. Ähnliche Ergebnisse mit NH_4Cl -Lösungen wurden zwar schon an anderer Stelle (1) von uns veröffentlicht, wurden aber der Vollständigkeit halber unter den variierten Bedingungen wiederholt und durch Parallelversuche mit reiner Silikat-Fällung erweitert.

Dabei zeigte sich, daß auch hiernach 8 Fraktionen (24 ml Elutionsvolumen) sich das ^{137}Cs durch 1,0 m und 0,1 m NH_4NO_3 -

Lösungen von Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung ablösen läßt (Vers.-Nr.: 2241, 2251; 1,0 m NH_4NO_3 : 92,65 %; 0,1 m NH_4NO_3 : 71,5 %), während es bei 0,01 m NH_4NO_3 -Lösung weitgehend adsorbiert bleibt (4,34 %; Vers.-Nr.: 2261).

Die neutralen NaCl-Lösungen wirken weitaus schlechter eluierend. So wird mit 1,0 m NaCl-Lösung nach dem gleichen Elutionsvolumen nur 12,8 % abgelöst (Vers.-Nr.: 2271). Bei 0,1 m NaCl-Lösung hat man vollständige Adsorption; desgleichen bei 1,0 m Na-Acetat-Lösung (Vers.-Nr.: 2281, 2291). Man kann daraus schließen, daß in erster Linie die Acitität, daneben aber auch die Konzentration des Elutionsmittels für die Elution des ^{137}Cs den Ausschlag gibt.

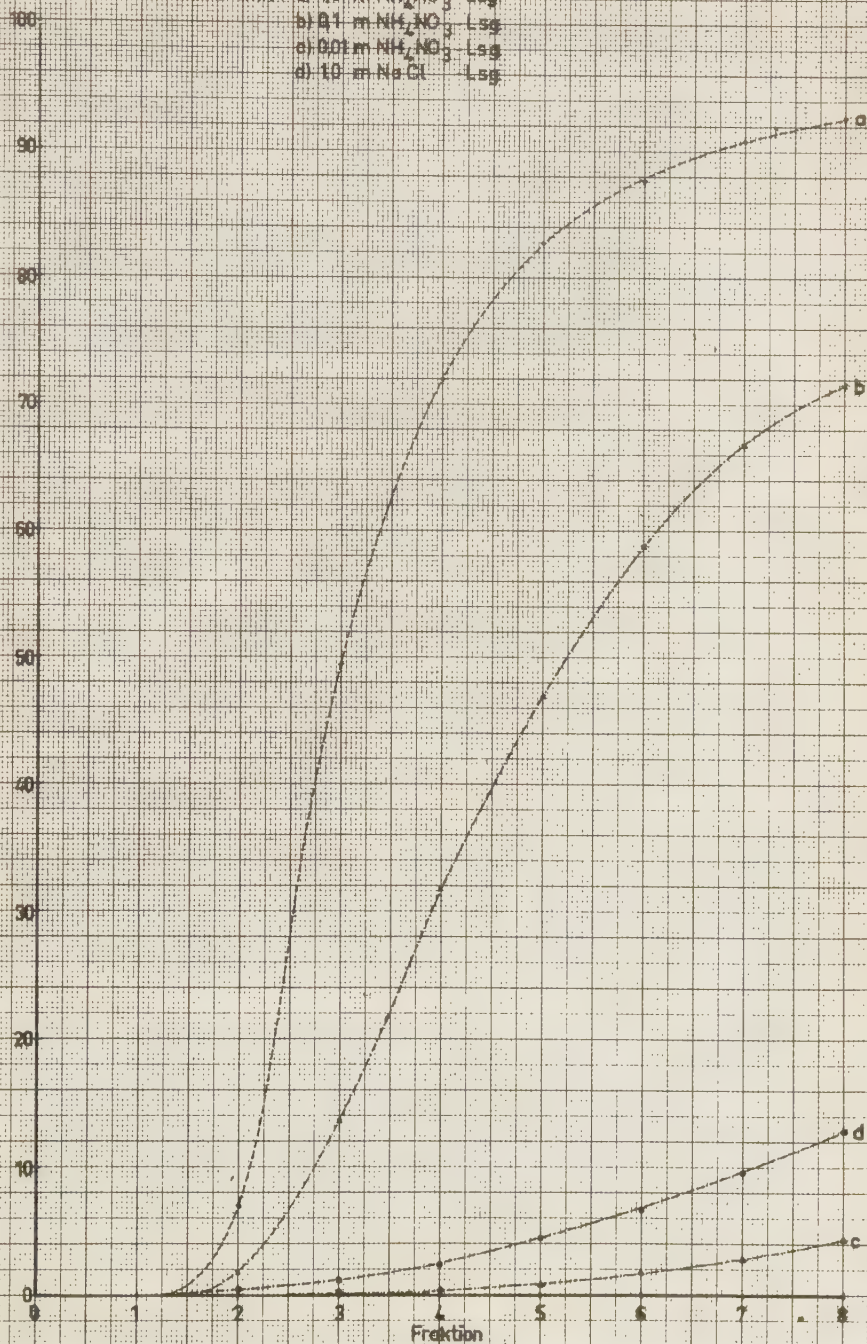
Ähnlich liegen die Verhältnisse auch bei reiner Silikat-Fällung. Bei den Elutionen mit NH_4NO_3 -Lösungen kommt das ^{137}Cs sehr schnell (Vers.-Nr.: 2341, 2351), während sich bei den Elutionen mit neutralen NaCl-Lösungen die Adsorptionswirkung des Silikats bemerkbar macht. Bei 1,0 m NaCl-Lösung sind nach 24 ml noch immer 1/3 der eingesetzten Aktivität adsorbiert (Vers.-Nr.: 2371), bei der 0,1 m NaCl-Lösung sogar noch 9/10 (Vers.-Nr.: 2381).

Auffallend ist auch, daß es sich im NH_4NO_3 -Eluat aus Zirkonhypophosphat überwiegend um Cs/Ba-Gleichgewichtslösung handelt, während man bei 0,1 n NaCl-Lösung, speziell am Anfang der Elutionen, einen größeren Ba-Überschuß erhält. Beim reinen Silikat erhält man bei den Elutionen mit NH_4NO_3 -Lösungen ebenfalls wieder fast reines Ba/Cs-Gleichgewicht, während man bei NaCl-Lösungen (analog zu den Elutionen aus Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällungen) auch wieder ein Ansteigen des Gleichgewichtsanteils feststellt, diesmal allerdings bis auf 95 % bei 1,0 m NaCl- und auf 80 % bei 0,1 m NaCl-Lösung (Vers.-Nr.: 2371, 2381).

^{137}Cs Zr-Hydrophosphat/Silikat

Elution von ^{137}Cs

- mit:
- a) 1,0 m NH_4NO_3 -Lsg.
 - b) 0,1 m NH_4NO_3 -Lsg.
 - c) 0,01 m NH_4NO_3 -Lsg.
 - d) 1,0 m NaCl-Lsg.



III. EXPERIMENTELLER TEIL.

A. Meßtechnik.

a. Messung der β -Strahler.

Für die Bestimmung der Aktivität von β -Strahlern hat sich die Messung aus Lösungen bei Grenzsichtdicke gut bewährt. Die aktive Lösung befand sich dabei in gleichdimensionierten Meßschälchen (12 mm Höhe, 41 mm lichte Weite, Meßvolumen 15 ml) unter dem Zählrohr in einer lichtdichten Kammer. Der Abstand Zählrohrfenster - Flüssigkeitsoberfläche betrug 5 mm. Durch diese feste Anordnung hat man immer den gleichen Geometriefaktor.

Als Detektor diente ein Geiger-Müller-Stahlmantelzählrohr der Firma Anton Electronic Laboratories, Inc., Brooklyn, USA. Dieses Zählrohr der Type 220 T hat einen Fensterdurchmesser von 29 mm, entsprechend einer Fläche von $6,6 \text{ cm}^2$. Die Dicke des Glimmerfensters wurde von der Herstellerfirma mit $1,8 - 2,2 \text{ mg/cm}^2$ angegeben. Die aufgenommene Zählrohrcharakteristik ergab im Plateau von 1150 - 1400 Volt eine Steigung von 1,1 %. Als günstigste Arbeitsspannung wurde 1300 Volt gewählt und über alle Messungen beibehalten. An Nulleffekt zählte man 50 - 70 Imp/Min.; er wurde täglich vor und nach den Versuchen bestimmt. Bei höheren Zählraten (Z.R. > 3500 Imp/Min.) mußten die gemessenen Werte mit einer Aufwertungskurve korrigiert werden. Diese durch das begrenzte Auflösungsvermögen des Zählrohrs bedingten Differenzen wurden mit Hilfe einer ^{90}Sr -Verdünnungsreihe bestimmt.

Als Zähler diente z. T. ein Beckman/Berkeley Decimatic Scaler, Model 2020 mit Register and Timer, Model 838 A, z. T. ein Frieeseke & Höpfner FH 90. Da das FH 90 kein Zeitsteuerteil besitzt, mußte das Abschalten manuell ausgeführt werden. Die Zeit wurde mit einer Stoppuhr bestimmt.

b) Messung der γ -Strahler.

Es ist bekannt, daß die Ansprechwahrscheinlichkeit von Geiger-Müller-Zählrohren auf γ -Quanten sehr gering ist; sie liegt in der Größenordnung von 1 %. Man muß daher für Messungen von γ -Strahlern mit Zählrohren wesentlich höhere Aktivitäten einsetzen als bei β -Strahlern. Zur Registrierung von γ -Strahlern verwendet man daher heute bevorzugt Szintillationszähler, die bei geeigneten Szintillatoren eine Ansprechwahrscheinlichkeit von 80 % und darüber besitzen.

Für die Messungen von $^{137}\text{Cs}/\text{Ba}$ wurde aus diesem Grund eine γ -Szintillationsapparatur verwendet. Sie bestand aus:

- 1) einem NaJ(Tl)-Bohrlocheinkristall,
- 2) einem SEV vom Typ EMI 9536
- 3) einem selbstgebauten Spannungsteiler und Kathodenfolger
- 4) einem Einkanalanalysator PA-2A der Firma TMC und
- 5) einem Beckman/Berkeley Zählgerät 7160 B.

Probe, Einkristall und Photomultiplier befanden sich in einer Bleiabschirmung. Die Zeitsteuerung erfolgte über das Zählgerät bei Meßdauern von 10 Sekunden automatisch, andernfalls halbautomatisch.

Als Szintillationskristall wurde die Type 7 F 8 der Firma Harshaw verwendet. Dieser NaJ(Tl)-Bohrlocheinkristall hat einen Durchmesser von 1 3/4" und eine Höhe von 2". Die Abmessungen der Bohrung: Durchmesser 3/4", Länge 1 1/2".

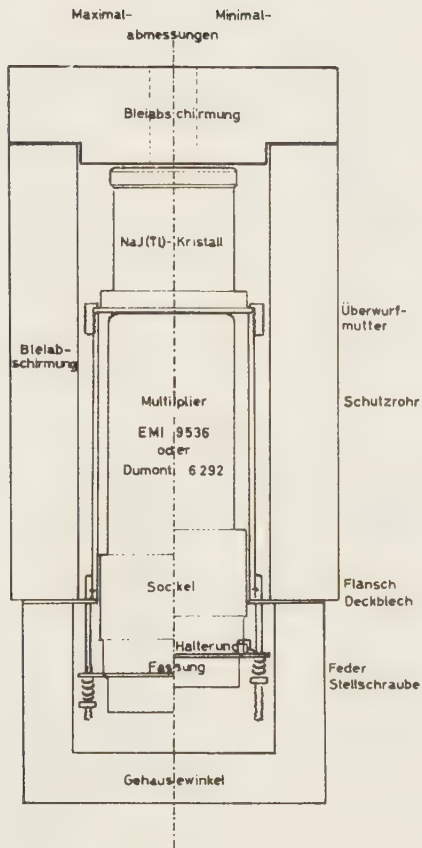
Der Photomultiplier wurde aus einer Reihe von SEV der Typen Dumont 6292 (fokussierbar) und EMI 9536 (nicht fokussierbar) ausgewählt. Multiplier der gleichen Type zeigten hierbei sehr große Güteschwankungen. Der bei den späteren Messungen verwendete EMI 9536 zeigte sich allen anderen zur Verfügung stehenden Sekundärelektronenvervielfachern sowohl hinsichtlich der Stabilität als auch des Auflösungsvermö-

gens überlegen, obwohl er nicht fokusierbar ist. Abgesehen von einer kleinen Verschiebung der Peaklage zu Beginn der Untersuchungen, blieb er nach dieser Einfahrzeit vollständig konstant.

Da gerade im Anfangsstadium die Multiplier und verschiedene elektrische Bauelemente öfters ausgetauscht werden mußten, um die optimalen Arbeitsbedingungen zu erproben, war es erforderlich die Apparatur so zu bauen, daß

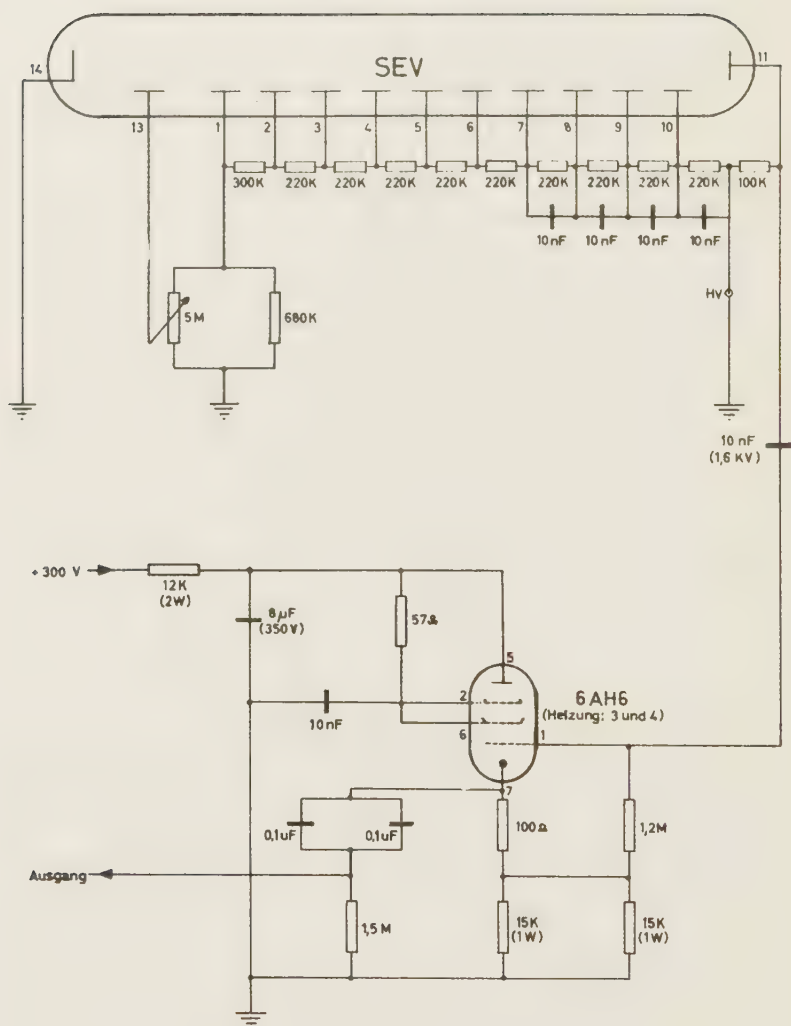
- 1) die innerhalb verhältnismäßig großer Toleranzen schwankenden Abmessungen der SEV aufgefangen wurden und
- 2) Spannungsteiler und Kathodenfolger leicht zugänglich blieben. Deshalb wurde die Fassung des Multipliers und damit dieser selbst frei aufgehängt und durch verstellbare Federn gegen den NaJ-Kristall gedrückt. Der Einkristall wurde durch das Schutzrohr des Multipliers und eine Überwurfmutter immer in gleicher Lage gehalten (siehe Schnittzeichnung Seite 47). Durch die freie Aufhängung wurde eine Verwinkelung des Kristalls gegen solche SEV verhindert, bei denen der Kolben nicht senkrecht in den Sockel eingekittet war.

Der Spannungsteiler war direkt an den Sockel angeschlossen, der Kathodenfolger als Einschub in das die Bleiabschirmung, Kristall und Multiplier tragende Gehäuse gebaut. Dessen Wände waren allseits abnehmbar. Dadurch wurde erreicht, daß man auch während des Betriebs an die Bauelemente gelangen und sie austauschen konnte. Spannungsteiler und Kathodenfolger wurden nach einer modifizierten Schaltung eines kommerziellen Geräts (Hamner) gebaut. Für den Arbeitswiderstand erhielt man die besten Ergebnisse bei 100 K Ω m. (Schaltplan siehe Seite 48). Bei 1 M Ω m stiegen die Impulse sehr steil an, der Abfall war aber zu langsam. Bei einem Arbeitswiderstand von 100 K Ω m und einer Spannung von 900 Volt am SEV erhielt man eine Anstiegsdauer (10 - 90 %) von 0,3 μ sec und eine Impulsdauer von 9 μ sec bei einer Amplitude von 1,05 Volt am Verstärkereingang.



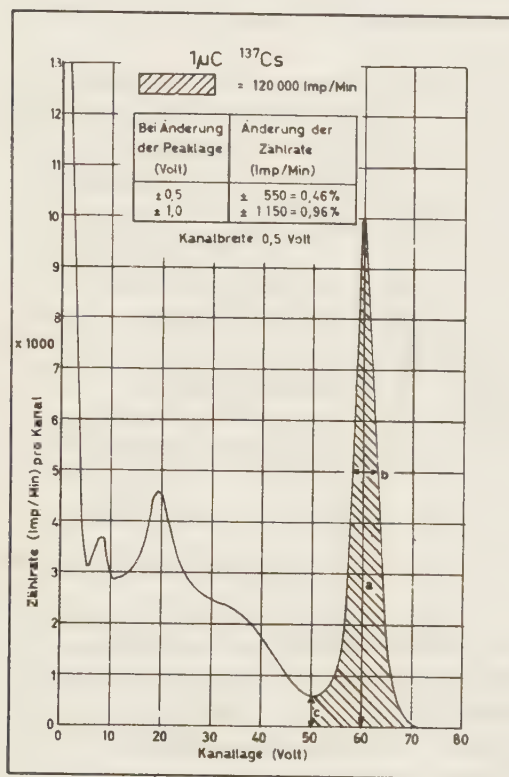
Maßstab 1:2

QUERSCHNITT DURCH DIE SZINTILLATIONSAPPARATUR



SCHALTPLAN FÜR
 SPANNUNGSTEILER UND KATHODENFOLGER
 FÜR SEV DUMONT 6292, EMI9536 U.Ä.TYPEN

Gemessen wurden die γ -aktiven Flüssigkeiten in auf 3 ml kalibrierten Glasröhrchen mit 10,5 mm lichter Weite. Um den Einfluß von doch eventuell auftretenden Schwankungen der



Peaklage möglichst klein zu halten, andererseits aber die Zählrate bei gleicher Aktivität aus statistischen Gründen nicht allzu klein werden zu lassen, wurden nur die Impulse im Photopeak gezählt (siehe nebenstehende Skizze). Dabei wurde zur besseren Reproduzierbarkeit das Maximum auf einen bestimmten Kanal (60 V) mit Hilfe der Hochspannung einjustiert und im vorhergehenden Minimum (50 V) diskriminiert. Eine nun auftretende Verschiebung der Maximumslage bewirkte nun zwar auch eine proportionale Verschiebung der unteren Schwelle. Dieser

Zuwachs bzw. Verlust der Zählrate im Minimum ist aber relativ gering, denn bei der erzielten Halbwertsbreite des Photopeaks von 9,0 % (b/60) beträgt das Amplitudenverhältnis zwischen Maximum und Minimum 16,6 : 1 (a/c).

Der Zerfall des $^{137}\text{Ba}^m$ wurde im allgemeinen derart aufgenommen, daß immer eine Meßzeit von 1,0 Minuten mit einer Pause von 0,3 Minuten abwechselte. $^{137}\text{Cs/Ba}$ -Gleichgewichtsaktivitäten wurden 5 x 10 Minuten gemessen, der Nulleffekt aus einer 10-minütigen Messung gemittelt.

B. Herstellung der Austauscher.

Als Austauschermaterial wurde für diese Arbeit silikat-haltiges Zirkonphosphat und Zirkonhypophosphat verwendet, das in einer leicht abgewandelten Methode nach Schäfer (2) hergestellt wurde:

16,1 g (1/20 Mol) Zirkonoxychlorid löst man unter Rühren in 100 ml 0,5 n Salzsäure bei 45°, tropft eine Lösung von 9,8 g sirupöser Phosphorsäure, bzw. 15,7 g Natriumhypophosphat $\text{Na}_2\text{H}_2\text{P}_2\text{O}_6 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ (1/20 Mol) ^{x)}, beides ebenfalls in 100 ml 0,5 n HCl gelöst, unter Rühren zu und rührt noch etwa 10 Minuten kräftig weiter. Nach Zugabe von 100 ml Aceton läßt man - ebenfalls unter kräftigem Rühren - 100 ml 35 %-ige Wasserglaslösung eintropfen. Der Niederschlag wird abgesaugt, in 250 ml 0,5 n Salzsäure nochmals kurz aufgekocht und erneut abgesaugt. Das Filter wäscht man mit Aceton nach und trocknet im Trockenschrank über Nacht bei 50°. Das körnige Produkt siebt man ab. Für die Versuche wurde die Korngröße zwischen 0,4 und 1,0 mm verwendet. Dies waren ca. 70 % der Gesamtausbeute.

Für die Vergleichsversuche mit reiner Silikat-Fällung ließ man unter kräftigem Rühren 100 ml Wasserglaslösung langsam in eine auf etwa 40° erwärmte Mischung von 100 ml Aceton und 100 ml 0,5 n Salzsäure eintropfen und behandelte den Niederschlag wie oben angeführt weiter.

x) Der Firma Henkel & Cie., Düsseldorf, danken wir für Versuchsmuster von Natriumhypophosphat.

C. Löslichkeit der Austauscher in Salzsäure.

Das abgesiebte Austauschermaterial wurde von noch anhaftenden kleinen Partikelchen in 0,1 n HCl abgeschlämmt und in Säulen gefüllt. Aus ihnen wurde analog zu den Versuchen je 50 ml 0,1 n, 0,5 n und 2,0 n Salzsäure eluiert. Die Eluate wurden unter einer Theratherm-Lampe eingedampft und anschließend noch 2 Stunden im Trockenschrank bei 150° getrocknet. An Rückstand wurde ausgewogen:

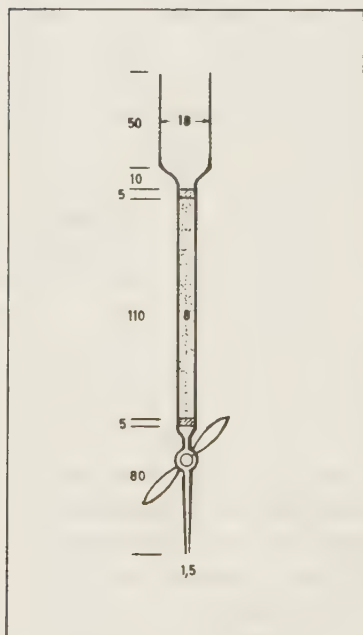
Normalität der HCl	silikathal- tiges Zirkon- phosphat		silikathal- tiges Zirkon- hypophosphat		reine Silikat- fällung	
	mg	%	mg	%	mg	%
2,0	1,0	0,0020	1,0	0,0020	0,0	0,0000
0,5	0,7	0,0014	1,3	0,0026	0,0	0,0000
0,1	0,7	0,0014	1,4	0,0028	0,5	0,0010

D. Herstellung einer reinen Y-Lösung mit TTA nach Hoyer (22).

Die saure Sr/Y-Gleichgewichtslösung wird mit NaOH neutralisiert und mit 5 ml Pufferlösung von $p_H = 5$ versetzt (23,85 ml 0,1 n NaOH, 50 ml 0,1 m Kaliumbiphtalatlösung und 26,15 ml Wasser). In einem Scheidetrichter extrahiert man mit dem gleichen Volumen einer 0,1 m benzolischen Thionyltrifluoracetone-Lösung (TTA). Dabei geht das Y in die organische Phase, während das Sr in der wässrigen bleibt. Letztere bewahrt man nach der Trennung auf. Sie kann nach Wiedereinstellung des radioaktiven Gleichgewichts, also nach etwa 4 Wochen, erneut mit TTA-Lösung ausgeschüttelt werden. Die benzolische Phase wird nochmals mit 5 ml Pufferlösung ausgeschüttelt, um noch etwa vorhandene Sr-Reste zu entfernen. Diese wässrige Pufferphase zeigt jedoch nach dem Abtrennen meist keine Radioaktivität mehr und kann verworfen werden. Aus der organischen Phase erhält man das

Yttrium durch dreimalige Rückextraktion mit je 10 ml 0,1 n HCl. Durch Wiederholung des Verfahrens nach Neutralisation kommt man zu einer Reinheit von mindestens 10^{-5} . Bei jedem neuen Ansatz wurde die Reinheit durch Aktivitätsabfall über 10 τ = 27 Tage kontrolliert.

E. Arbeitsverfahren bei der Elution.



Bei fast allen Elutionen wurden Austauschersäulen verwendet, die der nebenstehenden Skizze entsprechen und deren Abmessungen dieser entnommen werden können. Um ein Vordringen des Austauschermaterials bis zum Hahn zu verhindern, wird erst ein Glaswollepfropfen von etwa 5 mm Höhe in die Säule eingeführt und diese dann mit destilliertem Wasser gefüllt. Damit eine gleichmäßige Sedimentation des Austauschermaterials erreicht wird - von ihr ist die Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse stark abhängig - schlämmt man den Austauscher unter Durchfluß ein. Dabei darf der Flüssigkeitsspiegel

nie unter die Austauscheroberfläche absinken, da sich sonst Luftblasen und Kanäle innerhalb des Austauscherbetts bilden. Bei 2 g Austauscher erhält man so eine etwa 100 - 110 mm hohe Füllung. Um beim Beladen und Nachfüllen mit Elutionsmittel die Füllung nicht aufzuwirbeln, kommt über das Austauschermaterial nochmals ein Glaswollepfropfen. Man erhält ein Austauscherbett von etwa 5,0 - 5,5 cm³. Auf das

Zwischenraumvolumen entfallen hiervon etwa 40 - 45 %, d. h. etwa 2,2 - 2,5 ml. Bei den Versuchen mit der Säureform der Austauscher (H-Form) wurden die Säulen 6 Stunden unter HCl der Konzentration gestellt, mit der sie später eluiert werden sollten. Nach dieser Zeit wurden sie auf 0,1 n salzsauer gestellt und mit der in 0,1 n HCl gelösten Aktivität beladen.

Bei den Versuchen mit den Salzformen der Austauscher wurden die mit Salzsäure vorbehandelten Säulen erst neutral gewaschen, dann ließ man 50 ml der entsprechenden Salzlösung langsam durch die Säule fließen. Unter dieser Lösung blieb der Austauscher 6 Stunden stehen. Danach wurde die im Zwischenraumvolumen befindliche überschüssige Salzlösung mit destilliertem Wasser ausgewaschen und die Säule mit der Aktivität beladen.

Zur Beladung ließ man die Flüssigkeit in der Säule bis zum oberen Rand des oberen Glaswollepfropfens ausfließen, gab in das Vorratsgefäß der Säule die in 0,5 ml 0,1 n HCl gelöste Aktivität und begann langsam zu eluieren. Hatte der Flüssigkeitsspiegel wieder den oberen Rand des Pfropfens erreicht, so wartete man 5 Minuten und gab dann noch 2,5 ml HCl der Konzentration nach, mit der weiter eluiert werden sollte. Bei den Elutionen mit Salzlösungen wurden diese bereits hier verwendet. Diese 3 ml Eluat gaben die erste Fraktion. Bei den Fraktionen 2 - 8 wurde ebenfalls mit je 3 ml Säure bzw. Salzlösung eluiert. Bei den teilweise weiter durchgeführten Elutionen wurde das Fraktionsvolumen ab der 9. Fraktion auf 10 ml vergrößert.

Die Elutionsdauer betrug für 3,0 ml zwischen 0,6 und 0,8 Minuten, für 10 ml etwa 2,5 Minuten. Mit der ersten Elution wurde 5 Minuten nach Beladung der Säule begonnen, jede weitere erfolgte - bedingt durch den Arbeitsrhythmus - nach weiteren 5 - 6 Minuten. Eine Ausnahme bildeten hierbei lediglich die $^{137}\text{Cs}/\text{Ba}$ -Elutionen. Hier betrug die Zwischen-

zeit zwischen zwei Elutionen etwa 1 Stunde. In dieser Zeit konnte sich in der Säule das Cs/Ba-Gleichgewicht erneut bis auf 10^{-6} einstellen und gleichzeitig der Aktivitätsabfall des abgetrennten $^{137}\text{Ba}^m$ über 20 Halbwertszeiten verfolgt werden.

Aufgefangen wurden die Eluate bei den für die γ -Messungen bestimmten Proben direkt in den Meßröhrchen, bei den mit Geiger-Müller-Zählrohr zu messenden Proben in 50 ml Erlenmeyer-Kölbchen. Letztere Proben wurden mit Salzsäure auf 15 ml aufgefüllt, gut geschüttelt (Homogenität ist bei den Messungen bei Grenzsichtdicke äußerst wichtig, denn es handelt sich ja hierbei praktisch um eine Konzentrationsmessung), in die Meßschälchen gefüllt und gemessen.

Bei den Elutionen mit Salzlösungen wurde analog vorgegangen.

IV. TABELLENTEIL.

Jeder Versuch ist mit Hilfe einer 4-stelligen Zahl in diesem Teil leicht aufzufinden. Diese Versuchs-Nummer (Vers.-Nr.) wird bestimmt durch:

- a) Nuklid,
- b) Austauscher,
- c) Elutionsmittel und
- d) Salzform des Austauschers.

Dabei bedeuten:

- a) 1000 204-Tl
2000 137-Cs/Ba
3000 90-Sr
4000 90-Y in Gleichgewichtslösung
5000 90-Y mit TTA abgetrennt
6000 Gemisch 90-Y + 204-Tl bekannter Zusammensetzung
- b) 100 Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
200 Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
300 reine Silikat-Fällung
- c) 10 2,0 n HCl
20 0,5 n HCl
30 0,1 n HCl
40 1,0 m NH_4NO_3 -Lösung
50 0,1 m NH_4NO_3 -Lösung
60 0,01 m NH_4NO_3 -Lösung
70 1,0 m NaCl-Lösung
80 0,1 m NaCl-Lösung
90 1,0 m Na-Acetat-Lösung
- d) 1 H-
2 NH_4 -
3 Na-
4 Ba- Form
5 Y-
6 Tl-

Eluiert man beispielsweise ^{90}Sr (3000) von der Ba-Form (4) des Zr-Hypophosphat/Silikat-Austauschers (200) mit 0,1 n HCl (30), so ist dieser versuch mit der Nr. 3234 gekennzeichnet.

Die Versuche sind in der Reihe steigender Versuchs-Nummern angeordnet.

Versuche Nr.: 1111 - 1115
 Nuklid: 204-Tl Beladung: 34 000 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Vers.- Nr.:	Form	Fraktion Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion %
			Imp/Min	%	
1111	H ⁺ -	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	629	1,85	1,85
		4	2 462	7,24	9,09
		5	3 341	9,83	18,92
		6	4 250	12,50	31,42
		7	4 210	12,38	43,80
		8	2 560	7,53	51,33
1112	NH ₄ ⁺ -	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	13 860	40,76	40,76
		4	9 530	28,03	68,79
		5	3 245	9,54	78,33
		6	1 526	4,49	82,82
		7	945	2,78	85,60
		8	702	2,06	87,66
1113	Na ⁺ -	1	0	0,00	0,00
		2	3	0,01	0,01
		3	1 748	5,14	5,15
		4	5 712	16,80	21,95
		5	5 542	16,30	38,25
		6	3 866	11,37	49,62
		7	3 036	8,93	58,55
		8	2 152	6,33	64,88
1114	Ba ⁺⁺ -	1	0	0,00	0,00
		2	1	0,00	0,00
		3	5 260	15,47	15,47
		4	8 109	23,85	39,32
		5	5 681	16,71	56,03
		6	3 550	10,44	66,47
		7	2 162	6,36	72,83
		8	1 523	4,48	77,31
1115	Y ⁺⁺⁺ -	1	14	0,04	0,04
		2	2 723	8,01	8,05
		3	8 320	24,47	32,52
		4	4 974	14,63	47,15
		5	2 873	8,45	55,60
		6	2 077	6,11	61,71
		7	1 600	4,71	66,42
		8	1 224	3,60	70,02

Versuche Nr.: 1121 - 1125
 Nuklid: 204-Tl Beladung: 34 000 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,5 n HCl

Vers.- Nr.	Form	Fraktion Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion %
			Imp/Min	%	
1121	H-	1	0	0,00	0,00
		2	2	0,01	0,01
		3	94	0,28	0,29
		4	77	0,23	0,52
		5	52	0,15	0,67
		6	49	0,14	0,81
		7	31	0,09	0,90
		8	26	0,08	0,98
1122	NH ₄ -	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	664	1,95	1,95
		4	916	2,70	4,65
		5	510	1,50	6,15
		6	324	0,95	7,10
		7	198	0,58	7,68
		8	150	0,44	8,12
1123	Na-	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	20	0,06	0,06
		4	105	0,31	0,37
		5	326	0,96	1,33
		6	520	1,53	2,86
		7	765	2,25	5,11
		8	1 020	3,00	8,11
1124	Ba-	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	20	0,06	0,06
		4	170	0,50	0,56
		5	377	1,11	1,67
		6	544	1,60	3,27
		7	714	2,10	5,37
		8	877	2,58	7,95
1125	Y-	1	0	0,00	0,00
		2	27	0,08	0,08
		3	139	0,41	0,49
		4	156	0,46	0,95
		5	139	0,41	1,36
		6	122	0,36	1,72
		7	105	0,31	2,03
		8	88	0,26	2,29

Versuche Nr.: 1131 - 1135
 Nuklid: 204-Tl Beladung 34 000 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,1 n HCl

Vers.- Nr.:	Form:	Fraktion Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion %
			Imp/Min	%	
1131	H-	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	0,	0,00	0,00
		4	1	0,00	0,00
		5	2	0,01	0,01
		6	2	0,01	0,02
		7	3	0,01	0,03
		8	6	0,02	0,05
1132	NH ₄ -	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	3	0,01	0,01
		4	7	0,02	0,03
		5	4	0,01	0,04
		6	3	0,01	0,05
		7	19	0,06	0,11
		8	10	0,03	0,14
1133	Na-	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	0	0,00	0,00
		4	0	0,00	0,00
		5	0	0,00	0,00
		6	0	0,00	0,00
		7	0	0,00	0,00
		8	0	0,00	0,00
1134	Ba-	1	0	0,00	0,00
		2	3	0,01	0,01
		3	2	0,01	0,02
		4	4	0,01	0,03
		5	2	0,01	0,04
		6	3	0,01	0,05
		7	8	0,03	0,08
		8	3	0,01	0,09
1135	Y-	1	0	0,00	0,00
		2	2	0,01	0,01
		3	0	0,00	0,01
		4	0	0,00	0,01
		5	0	0,00	0,01
		6	0	0,00	0,01
		7	1	0,00	0,01
		8	0	0,00	0,01

Versuche Nr.: 1211 - 1215
 Nuklid: 204-Tl Beladung: 34 000 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Vers.- Nr.:	Form	Fraktion Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion
			Imp/Min	%	%
1211	H-	1	0	0,00	0,00
		2	3	0,01	0,01
		3	19 957	58,70	58,71
		4	11 766	34,61	93,32
		5	1 348	3,96	97,28
		6	269	0,79	98,07
		7	116	0,34	98,41
		8	90	0,24	98,65
1212	NH ₄ -	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	17 277	50,81	50,81
		4	8 817	25,91	76,72
		5	1 130	3,32	80,04
		6	92	0,27	80,31
		7	26	0,08	80,39
		8	24	0,07	80,46
1213	Na-	1	0	0,00	0,00
		2	5	0,02	0,02
		3	19 870	58,44	58,46
		4	12 560	36,94	95,40
		5	1 190	3,50	98,90
		6	126	0,37	99,27
		7	58	0,17	99,44
		8	27	0,08	99,52
1214	Ba-	1	0	0,00	0,00
		2	48	0,14	0,14
		3	26 080	76,71	76,85
		4	6 756	19,87	96,72
		5	615	1,81	98,53
		6	133	0,39	98,92
		7	65	0,19	99,11
		8	31	0,09	99,20
1215	Y-	1	14	0,04	0,04
		2	1 133	3,51	3,55
		3	442	1,30	4,85
		4	44	0,13	4,98
		5	15	0,04	5,02
		6	10	0,03	5,05
		7	7	0,02	5,07
		8	4	0,01	5,08

Versuche Nr.: 1221 - 1225
 Nuklid: 204-Tl Beladung: 34 000 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,5 n HCl

Vers.- Nr.:	Form	Fraktion Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion
			Imp/Min	%	%
1221	H-	1	0	0,00	0,00
		2	3	0,01	0,01
		3	1 044	3,07	3,08
		4	10 427	30,67	33,75
		5	9 631	28,33	62,08
		6	5 058	14,88	76,96
		7	2 495	7,34	84,30
		8	1 427	4,19	88,49
1222	NH ₄ -	1	0,	0,00	0,00
		2	15	0,04	0,04
		3	4 580	13,47	13,51
		4	10 121	29,77	43,28
		5	6 852	20,15	63,43
		6	2 988	8,79	72,22
		7	1 283	3,78	76,00
		8	739	2,17	78,17
1223	Na-	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	5 410	15,91	15,91
		4	17 230	50,67	66,58
		5	8 735	25,69	92,27
		6	1 622	4,77	97,04
		7	367	1,08	98,12
		8	153	0,45	98,57
1224	Ba-	1	0	0,00	0,00
		2	7	0,02	0,02
		3	10 190	29,97	29,99
		4	20 225	59,49	89,48
		5	2 628	7,73	97,21
		6	422	1,24	98,45
		7	119	0,35	98,80
		8	48	0,14	98,94
1225	Y-	1	105	0,31	0,31
		2	537	1,58	1,89
		3	398	1,17	3,06
		4	204	0,60	3,66
		5	112	0,33	3,99
		6	88	0,26	4,25
		7	54	0,16	4,41
		8	41	0,12	4,53

Versuche Nr.: 1231 - 1235
 Nuklid: 204-Tl Beladung: 34 000 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,1 n HCl

Vers.- Nr.:	Form	Fraktion Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion
			Imp/Min	%	%
1231	H-	1	0	0,00	0,00
		2	2	0,01	0,01
		3	7	0,02	0,03
		4	33	0,10	0,13
		5	127	0,37	0,50
		6	636	1,87	2,37
		7	1 694	4,98	7,35
		8	2 412	7,09	14,44
1232	NH ₄ -	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	3	0,01	0,01
		4	4	0,01	0,02
		5	4	0,01	0,03
		6	4	0,01	0,04
		7	11	0,03	0,07
		8	38	0,11	0,18
1233	Na-	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	0	0,00	0,00
		4	1	0,00	0,00
		5	217	0,64	0,64
		6	2 033	5,98	6,62
		7	4 145	12,19	18,81
		8	4 270	12,56	31,37
1234	Ba-	1	0	0,00	0,00
		2	0	0,00	0,00
		3	5	0,02	0,02
		4	204	0,60	0,62
		5	1 258	3,70	4,32
		6	3 672	10,80	15,12
		7	4 957	14,58	29,70
		8	4 457	13,11	42,81
1235	Y-	1	20	0,06	0,06
		2	190	0,56	0,62
		3	85	0,25	0,87
		4	48	0,14	1,01
		5	44	0,13	1,14
		6	64	0,19	1,33
		7	54	0,16	1,49
		8	61	0,18	1,67

Versuche Nr.: 1311 1321 1331
 Nuklid: 204-Tl Beladung: 34 000 Imp/Min
 Austauscher: reine Slikat-Fällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl 0,5 n HCl 0,1 n HCl

Vers.- Nr.:	HCl- Konz.	Fraktion Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion %
			Imp/Min	%	
1311	2,0 n	1	0	0,00	0,00
		2	20 468	60,20	60,20
		3	10 532	30,98	91,18
		4	1 563	4,60	95,78
		5	175	0,52	96,30
		6	55	0,16	96,46
		7	44	0,13	96,59
		8	41	0,12	96,71
1321	0,5 n	1	0	0,00	0,00
		2	17 650	51,91	51,91
		3	14 086	41,43	93,34
		4	1 023	3,01	96,35
		5	95	0,28	96,63
		6	50	0,15	96,78
		7	26	0,08	96,86
		8	22	0,06	96,92
1331	0,1 n	1	0	0,00	0,00
		2	15 555	45,75	45,75
		3	17 333	50,98	96,73
		4	636	1,87	98,60
		5	48	0,14	98,74
		6	5	0,01	98,75
		7	5	0,01	98,96
		8	3	0,01	98,77

Versuche Nr.: 2111 - 2115
 Nuklid: $^{137}\text{Cs}/\text{Ba}$
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr.: 2111 H-Form Beladung: 677 500 Imp/Min.					
1	16 180	0	0,00	0,00	0,00
2	74 250	3	0,00	0,00	0,00
3	87 250	391	0,45	0,06	0,06
4	89 300	347	0,39	0,05	0,11
5	119 200	347	0,29	0,05	0,16
6	108 500	692	0,63	0,10	0,26
7	109 700	812	0,74	0,12	0,38
8	112 400	945	0,84	0,14	0,52
Vers.-Nr.: 2112 NH ₄ -Form Beladung: 1 350 000 Imp/Min.					
1	100	14	14,00	0,00	0,00
2	250 000	3 488	1,40	0,26	0,26
3	295 000	5 815	1,97	0,43	0,69
4	269 000	3 495	1,30	0,26	0,95
5	309 000	3 135	1,01	0,23	1,18
6	326 200	3 413	1,04	0,25	1,43
7	325 000	3 748	1,15	0,28	1,71
8	316 400	4 119	1,30	0,31	2,02
Vers.-Nr.: 2113 Na-Form Beladung: 744 500 Imp/Min.					
1	1 892	0	0,00	0,00	0,00
2	64 900	36	0,06	0,00	0,00
3	76 250	210	0,28	0,03	0,03
4	78 250	371	0,47	0,05	0,08
5	83 470	437	0,52	0,06	0,14
6	94 780	564	0,60	0,08	0,22
7	106 420	754	0,71	0,10	0,32
8	144 800	988	0,68	0,13	0,45
Vers.-Nr.: 2114 Ba-Form Beladung: 1 555 000 Imp/Min.					
1	664	0	0,00	0,00	0,00
2	249 350	432	0,09	0,02	0,02
3	237 950	1 117	0,47	0,08	0,10
4	269 500	1 740	0,65	0,13	0,23
5	257 300	2 000	0,78	0,15	0,38
6	334 800	2 777	0,83	0,21	0,59
7	329 700	3 563	1,08	0,26	0,85
8	329 600	4 042	1,22	0,30	1,15
Vers.-Nr.: 2115 Y-Form Beladung: 1 400 000 Imp/Min.					
1	62 000	31	0,05	0,00	0,00
2	163 000	5 709	3,50	0,41	0,41
3	286 000	19 845	6,94	1,42	1,83
4	295 000	25 881	8,77	1,85	3,68
5	297 000	25 082	8,45	1,79	5,47
6	317 000	27 000	8,52	1,93	7,40
7	340 000	27 800	8,18	1,99	9,39
8	360 000	29 620	8,23	2,12	11,51

Versuche Nr.: 2121 - 2125
 Nuklid: 137-Cs/Ba
 Austausch: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,5 n HCl

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr.: 2121 H-Form Beladung: 677 500 Imp/Min.					
1	2 500	0	0,00	0,00	0,00
2	20 750	0	0,00	0,00	0,00
3	64 050	8	0,01	0,00	0,00
4	54 100	23	0,04	0,00	0,00
5	63 570	4	0,00	0,00	0,00
6	67 820	0	0,00	0,00	0,00
7	68 650	11	0,02	0,00	0,00
8	73 600	14	0,02	0,00	0,00
Vers.-Nr.: 2122 NH ₄ -Form Beladung: 1 350 000 Imp/Min.					
1	510	5	1,00	0,00	0,00
2	293 300	4 284	1,46	0,32	0,32
3	302 600	5 127	1,69	0,38	0,70
4	302 900	1 976	0,65	0,15	0,85
5	321 400	1 008	0,31	0,07	0,92
6	292 600	643	0,22	0,05	0,97
7	344 900	670	0,19	0,05	1,02
8	323 700	602	0,19	0,04	1,06
Vers.-Nr.: 2123 Na-Form Beladung: 744 500 Imp/Min.					
1	80	0	0,00	0,00	0,00
2	25 250	5	0,02	0,00	0,00
3	28 230	30	0,11	0,00	0,00
4	42 400	31	0,07	0,00	0,01
5	51 150	24	0,05	0,00	0,01
6	45 320	68	0,15	0,01	0,02
7	50 120	11	0,02	0,00	0,02
8	50 400	106	0,21	0,01	0,03
Vers.-Nr.: 2124 Ba-Form Beladung: 1 335 000 Imp/Min.					
1	700	0	0,00	0,00	0,00
2	175 560	0	0,00	0,00	0,00
3	150 930	43	0,03	0,00	0,00
4	180 950	64	0,04	0,01	0,01
5	178 900	77	0,04	0,01	0,02
6	209 000	98	0,05	0,01	0,03
7	187 300	119	0,06	0,01	0,04
8	228 000	143	0,06	0,01	0,05
Vers.-Nr.: 2125 Y-Form Beladung: 1 400 000 Imp/Min.					
1	24 800	233	0,94	0,02	0,02
2	134 000	25	0,02	0,00	0,02
3	140 000	131	0,09	0,01	0,03
4	166 000	245	0,15	0,02	0,05
5	211 000	475	0,22	0,03	0,08
6	220 000	752	0,34	0,05	0,13
7	221 000	1 015	0,46	0,07	0,20
8	255 000	1 415	0,56	0,10	0,30

Versuche Nr.: 2131 - 2135
 Nuklid: 137-Cs/Ba
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr.: 2131 H-Form Beladung: 677 500 Imp/Min					
1	2 510	0	0,00	0,00	0,00
2	33 070	0	0,00	0,00	0,00
3	35 450	2	0,01	0,00	0,00
4	35 900	2	0,01	0,00	0,00
5	40 300	5	0,01	0,00	0,00
6	36 000	0	0,00	0,00	0,00
7	35 730	4	0,01	0,00	0,00
8	38 430	0	0,00	0,00	0,00
Vers.-Nr.: 2132 NH ₄ -Form Beladung: 1 350 000 Imp/Min					
1	234	165	70,5	0,01	0,01
2	53 200	63	0,12	0,01	0,02
3	207 750	258	0,12	0,02	0,04
4	174 000	140	0,08	0,01	0,05
5	151 250	64	0,04	0,01	0,06
6	140 950	34	0,02	0,00	0,06
7	151 100	23	0,02	0,00	0,06
8	187 600	25	0,01	0,00	0,06
Vers.-Nr.: 2133 Na-Form Beladung: 744 500 Imp/Min					
1	117	11	9,40	0,00	0,00
2	30 770	6	0,02	0,00	0,00
3	40 610	6	0,02	0,00	0,00
4	47 975	8	0,02	0,00	0,00
5	47 610	21	0,04	0,00	0,01
6	47 160	24	0,05	0,00	0,00
7	44 355	4	0,01	0,00	0,01
8	51 150	39	0,08	0,01	0,02
Vers.-Nr.: 2134 Ba-Form Beladung: 1 355 000 Imp/Min					
1	3 500	21	0,60	0,00	0,00
2	68 950	11	0,02	0,00	0,00
3	93 100	0	0,00	0,00	0,00
4	65 450	0	0,00	0,00	0,00
5	66 925	5	0,01	0,00	0,00
6	63 400	7	0,01	0,00	0,00
7	77 700	25	0,03	0,00	0,01
8	81 000	30	0,04	0,00	0,01
Vers.-Nr.: 2135 Y-Form Beladung: 1 400 000 Imp/Min					
1	57 300	5	0,01	0,00	0,00
2	144 000	17	0,01	0,00	0,00
3	150 000	45	0,03	0,00	0,00
4	129 000	80	0,06	0,00	0,00
5	122 000	41	0,03	0,00	0,00
6	98 000	57	0,06	0,00	0,00
7	63 500	33	0,05	0,00	0,00
8	113 000	39	0,04	0,00	0,00

Versuche Nr.: 2211 - 2215
 Nuklid: 137-Cs/Ba
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr.: 2211 H-Form Beladung: 677 500 Imp/Min					
1	5 220	30	0,57	0,00	0,00
2	287 400	145 725	50,70	21,51	21,51
3	323 850	247 730	76,50	36,57	58,08
4	188 420	140 545	74,59	20,74	78,82
5	95 140	66 580	69,98	9,83	88,65
6	46 800	30 065	64,24	4,44	93,09
7	30 400	16 300	53,61	2,41	95,50
8	20 550	9 525	46,36	1,41	96,91
Vers.-Nr.: 2212 NH ₄ -Form Beladung: 1 350 000 Imp/Min					
1	10 750	1 286	11,96	0,01	0,01
2	552 400	354 185	64,12	26,24	26,25
3	595 400	508 615	85,42	37,68	63,93
4	353 650	301 440	85,24	22,33	86,26
5	151 550	125 050	82,51	9,26	95,52
6	62 900	48 090	76,45	3,56	99,09
7	27 360	17 910	65,45	1,33	100,41
8	16 570	8 790	53,06	0,65	101,06
Vers.-Nr.: 2213 Na-Form Beladung: 744 500 Imp/Min					
1	18	2	11,11	0,00	0,00
2	338 700	140 780	41,55	18,90	18,90
3	362 000	314 550	86,89	42,25	61,15
4	215 600	176 900	82,05	23,76	84,91
5	90 850	69 900	76,93	9,39	94,30
6	37 830	26 820	70,89	3,60	97,90
7	18 400	10 590	57,57	1,42	99,32
8	10 430	4 925	47,22	0,66	99,98
Vers.-Nr.: 2214 Ba-Form Beladung: 1 355 000 Imp/Min					
1	6 160	27	0,44	0,00	0,00
2	184 300	75 745	41,10	5,59	5,59
3	733 480	592 950	80,84	43,76	49,35
4	367 500	301 760	82,11	22,27	71,62
5	145 230	114 090	78,56	8,42	80,04
6	50 560	36 310	71,82	2,68	82,72
7	19 140	12 600	65,84	0,93	83,65
8	12 050	6 640	55,10	0,49	84,14
Vers.-Nr.: 2215 Y-Form Beladung: 1 400 000 Imp/Min					
1	6 090	140	0,23	0,00	0,00
2	251 460	235 170	93,70	16,83	16,83
3	712 870	623 990	87,53	44,57	61,40
4	402 660	342 020	84,94	24,43	85,83
5	173 110	139 720	80,71	9,98	95,81
6	68 140	44 800	65,75	3,20	99,01
7	49 940	19 740	39,53	1,41	100,42
8	11 040	3 080	27,91	0,22	100,64

Versuche Nr.: 2221 - 2225
 Nuklid: ¹³⁷-Cs/Ba
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,5 n HCl

rkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr.: 2221 H-Form Beladung: 677 500 Imp/Min					
1	31 900	20	0,06	0,00	0,00
2	222 800	47 240	21,20	6,97	6,97
3	273 100	110 990	40,64	16,38	23,35
4	270 600	127 095	46,97	18,76	42,11
5	208 900	100 550	48,13	14,84	56,95
6	160 650	74 620	46,45	11,01	67,96
7	117 300	51 940	44,28	7,67	75,63
8	89 425	37 035	41,43	5,47	81,10
Vers.-Nr.: 2222 NH ₄ -Form Beladung: 1 350 000 Imp/Min					
1	280	53	18,93	0,00	0,00
2	472 600	110 375	23,35	8,17	8,17
3	662 200	279 820	42,26	20,73	28,90
4	485 250	219 330	45,20	16,26	45,16
5	428 150	188 500	44,03	13,95	59,11
6	328 250	152 100	46,34	11,27	70,38
7	257 300	118 440	46,03	8,77	79,15
8	192 750	89 700	46,54	6,64	85,79
Vers.-Nr.: 2223 Na-Form Beladung: 744 500 Imp/Min					
1	2 360	14	0,59	0,00	0,00
2	265 830	32 250	12,13	4,33	4,33
3	281 700	119 525	42,43	16,05	20,38
4	534 800	134 290	25,11	18,04	38,42
5	267 800	123 080	45,96	16,63	54,95
6	198 200	94 490	47,67	12,69	67,64
7	142 000	67 830	47,77	9,11	76,75
8	95 400	43 150	45,23	5,80	82,55
Vers.-Nr.: 2224 Ba-Form Beladung: 1 355 000 Imp/Min					
1	27 470	0	0,00	0,00	0,00
2	475 630	56 940	11,97	4,20	4,20
3	576 760	207 250	35,93	15,30	19,50
4	539 360	250 130	46,37	18,46	37,96
5	462 400	223 980	48,44	16,53	54,49
6	314 920	155 780	49,47	11,50	65,99
7	222 100	109 100	49,12	8,07	74,06
8	176 780	81 155	45,91	5,99	80,05
Vers.-Nr.: 2225 Y-Form Beladung: 1 400 000 Imp/Min					
1	178 000	4 370	2,46	0,31	0,31
2	688 000	316 100	45,9	22,58	22,89
3	695 000	467 910	67,2	33,42	56,31
4	424 000	290 215	68,5	20,73	77,04
5	240 000	161 800	67,4	11,56	88,60
6	138 000	87 065	63,1	6,22	94,82
7	78 000	44 370	56,8	3,17	97,99
8	52 700	28 540	54,1	2,04	100,03

Versuche Nr.: 2231 - 2235
 Nuklid: 137-Cs/Ba
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr.: 2231 H-Form Beladung: 677 500 Imp/Min					
1	21 590	0	0,00	0,00	0,00
2	134 800	2 560	1,90	0,38	0,38
3	177 200	10 930	6,17	1,61	1,99
4	204 300	16 700	8,17	2,46	4,45
5	195 250	18 950	9,70	2,80	7,25
6	224 670	24 940	11,10	3,68	10,93
7	221 130	27 200	12,30	4,01	14,94
8	211 620	27 660	13,07	4,08	19,02
Vers.-Nr.: 2232 NH₄-Form Beladung: 1 350 000 Imp/Min					
1	380	28	7,35	0,00	0,00
2	253 600	27 980	11,03	2,07	2,07
3	336 900	59 150	17,56	4,38	6,45
4	361 850	47 440	13,11	3,51	9,96
5	379 500	39 660	10,45	2,94	12,90
6	354 500	35 755	10,09	2,65	15,55
7	400 250	41 640	10,40	3,08	18,63
8	343 200	40 500	11,80	3,00	21,63
Vers.-Nr.: 2233 Na-Form Beladung: 744 500 Imp/Min					
1	315	28	8,89	0,00	0,00
2	58 340	975	1,67	0,13	0,13
3	89 440	3 021	3,38	0,41	0,54
4	126 000	5 610	4,45	0,75	1,29
5	141 760	8 505	6,14	1,14	2,43
6	145 680	10 900	7,48	1,46	3,89
7	158 580	14 135	8,91	1,90	5,79
8	179 880	17 470	9,71	2,35	8,14
Vers.-Nr.: 2234 Ba-Form Beladung: 1 355 000 Imp/Min					
1	5 920	0	0,00	0,00	0,00
2	156 950	1 650	1,05	0,12	0,12
3	203 500	11 020	5,42	0,81	0,93
4	243 725	22 265	9,13	1,64	2,57
5	207 100	27 700	13,38	2,04	4,61
6	265 460	39 400	14,84	2,91	7,52
7	285 530	51 500	18,04	3,80	11,32
8	282 270	56 860	20,14	4,20	15,52
Vers.-Nr.: 2235 Y-Form Beladung: 1 400 000 Imp/Min					
1	102 000	636	0,63	0,05	0,05
2	500 000	63 040	12,61	4,50	4,55
3	560 000	146 400	26,1	10,46	15,01
4	490 000	157 330	32,1	11,24	26,25
5	505 000	168 420	33,3	12,03	38,28
6	431 000	154 380	35,8	11,03	49,31
7	350 000	130 070	37,2	9,29	58,60
8	310 000	110 140	35,5	7,87	66,47

Versuche Nr.: 2241 2251 2261
 Nuklid: 137-Cs/Ba Beladung: 677 500 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 1,0 n NH_4NO_3 0,1 n NH_4NO_3 0,01 n NH_4NO_3

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr. 2241 1,0 n NH ₄ NO ₃ -Lösung					
1	211	197	93,37	0,03	0,03
2	53 300	47 010	88,20	6,94	6,97
3	334 100	286 820	85,85	42,33	49,30
4	177 600	153 970	86,67	22,73	72,03
5	80 800	72 450	89,67	10,70	82,73
6	36 100	33 365	92,43	4,92	87,65
7	22 900	21 580	94,23	3,19	90,84
8	12 800	12 285	95,98	1,81	92,65
Vers.-Nr.: 2251 0,1 n NH ₄ NO ₃ -Lösung					
1	48	32	66,67	0,00	0,00
2	12 500	12 395	99,16	1,83	1,83
3	80 000	79 450	99,24	11,73	13,56
4	124 000	123 040	99,23	18,16	31,72
5	103 000	102 530	99,54	15,13	46,85
6	80 500	80 190	99,61	11,84	58,69
7	55 200	55 070	99,77	8,13	66,82
8	32 000	31 610	98,78	4,67	71,49
Vers.-Nr.: 2261 0,01 n NH ₄ NO ₃ -Lösung					
1	18	16	89	0,00	0,00
2	340	328	96,5	0,05	0,05
3	765	746	97,5	0,11	0,16
4	1 600	1 558	97,38	0,23	0,39
5	3 050	2 982	97,77	0,44	0,83
6	5 600	5 554	99,18	0,82	1,65
7	7 850	7 770	98,98	1,15	2,80
8	10 500	10 410	99,14	1,54	4,34

Versuche Nr.: 2271 2281 2291
 Nuklid: 137-Cs/Ba Beladung: 677 500 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 1,0 m NaCl 0,1 m NaCl 1,0 m Na-Acetat

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr.: 2271 1,0 m NaCl-Lösung					
1	56 600	34	0,06	0,01	0,01
2	73 900	2 166	2,93	0,32	0,33
3	83 300	5 085	6,10	0,75	1,08
4	93 800	8 670	9,24	1,28	2,36
5	108 200	13 490	12,47	1,99	4,35
6	105 000	16 460	15,68	2,43	6,78
7	102 800	19 180	18,66	2,83	9,61
8	101 300	21 760	21,48	3,21	12,82
Vers.-Nr.: 2281 0,1 m NaCl-Lösung					
1-8	0	0		0,00	0,00
Vers.-Nr.: 2291 1,0 m Na-Acetat-Lösung					
1-8	0	0		0,00	0,00

Versuche Nr.: 2311 2321 2331
 Nuklid: 137-Cs/Ba
 Austauscher: reine Silikat-Fällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl 0,5 n HCl 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in dieser	bis zu Fraktion
Vers.-Nr.: 2311 2,0 n HCl Beladung: 677 500 Imp/Min					
1	7 680	7 317	95,3	1,08	1,08
2	247 300	237 870	96,2	35,11	36,19
3	317 000	309 820	95,5	45,73	81,92
4	93 760	91 600	97,7	13,52	95,44
5	17 500	16 330	93,2	2,41	97,85
6	8 450	7 791	90,1	1,15	99,00
7	3 515	3 116	88,7	0,46	99,46
8	1 315	1 152	87,7	0,17	99,63
Vers.-Nr.: 2321 0,5 n HCl Beladung: 677 500 Imp/Min					
1	5 030	4 539	90,3	0,67	0,67
2	141 450	124 050	87,7	18,31	18,98
3	343 700	293 160	85,3	43,27	62,25
4	150 650	127 910	84,9	18,88	81,13
5	59 860	48 430	80,9	7,23	88,36
6	21 110	17 140	81,2	2,53	90,89
7	4 830	3 794	78,6	0,56	91,45
8	2 070	1 558	75,3	0,23	91,68
Vers.-Nr.: 2331 0,1 n HCl Beladung: 677 500 Imp/Min					
1	1 460	1 287	88,3	0,19	0,19
2	33 490	29 430	87,8	4,34	4,53
3	197 450	168 630	85,4	24,89	29,42
4	174 330	149 930	86,0	22,13	51,55
5	121 850	103 455	84,9	15,27	66,82
6	73 360	60 230	82,1	8,89	75,71
7	26 300	21 545	81,9	3,18	78,89
8	7 390	5 962	80,7	0,88	79,77

Versuche Nr.: 2341 2351
 Nuklid: 137-Cs/Ba Beladung: 677 500 Imp/Min
 Austauscher: reine Silikat-Fällung
 Elutionsmittel: 1,0 m NH_4NO_3 -Lösung 0,1 m NH_4NO_3 -Lösung

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in bis zu dieser Fraktion	
Vers.-Nr.: 2341 1,0 m NH ₄ NO ₃ -Lösung					
1	3 760	414	11,01	0,06	0,06
2	298 200	260 300	67,17	29,56	29,62
3	268 000	263 550	98,34	38,90	68,52
4	99 550	96 680	97,13	14,27	82,79
5	27 900	27 090	97,10	3,99	86,78
6	8 900	8 660	97,30	1,28	88,06
7	2 445	2 407	98,45	0,36	88,42
8	1 465	1 444	98,57	0,21	88,63
Vers.-Nr.: 2351 0,1 m NH ₄ NO ₃ -Lösung					
1	170	30	17,65	0,00	0,00
2	47 200	36 230	76,76	5,35	5,35
3	103 800	101 940	98,21	15,05	20,40
4	130 000	128 100	98,54	18,91	39,31
5	105 000	104 100	99,14	15,37	54,68
6	76 000	75 550	99,41	11,16	65,84
7	49 000	48 880	99,75	7,22	73,06
8	25 000	24 970	99,98	3,69	76,75

Versuche Nr.: 2371 2381
 Nuklid: 137-Cs/Ba Beladung: 677 500 Imp/Min
 Austauscher: reine Silikat-Fällung
 Elutionsmittel: 1,0 m NaCl-Lösung 0,1 m NaCl-Lösung

Fkt. Nr.:	Zählrate bezogen auf Elutionsende Imp/Min	Endaktivität nach 60 Min. Imp/Min	Gleichgewichts- anteil im Eluat %	% Cs eluiert in dieser Fraktion	bis zu dieser Fraktion
Vers.-Nr.: 2371 1,0 m NaCl-Lösung					
1	670	12	1,97	0,00	0,00
2	83 400	29 650	35,55	4,38	4,38
3	130 800	65 680	50,21	9,69	14,07
4	130 000	82 110	63,16	12,12	26,19
5	108 100	80 180	74,17	11,84	38,03
6	92 800	77 575	83,02	11,37	49,40
7	74 000	66 910	90,42	9,88	59,28
8	61 100	57 915	94,79	8,55	67,83
Vers.-Nr.: 2381 0,1 m NaCl-Lösung					
1	420	3	0,71	0,00	0,00
2	1 880	150	7,98	0,02	0,02
3	6 450	1 492	23,13	0,22	0,24
4	10 640	4 265	40,08	0,63	0,87
5	13 700	7 736	56,47	1,14	2,01
6	17 650	11 800	66,86	1,74	3,75
7	23 400	17 405	74,38	2,57	6,32
8	26 500	21 270	80,26	3,14	9,46

Versuche Nr.: 3111 - 3115 und 4111 - 4115
 Nuklid: 90-Sr/Y Beladung: 31 600 Imp/Min.
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Fkt. Nr.:	Anfangs- aktivität	End- aktivität	von der An- fangsaktivität entfallen auf		eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	
	Imp/Min	Imp/Min	90-Sr Imp/Min	90-Y Imp/Min	90-Sr %	90-Y %	90-Sr %	90-Y %
Vers.-Nr.: 3111 u. 4111 H-Form								
1	131	1 076	113	18	3,40	0,06	3,40	0,06
2	17 217	23 734	2 492	14 725	75,06	52,07	78,46	52,13
3	9 109	4 463	469	8 640	14,13	30,55	92,59	82,68
4	2 133	860	90	2 043	2,71	7,22	95,30	89,90
5	606	181	19	587	0,57	2,08	95,87	91,98
6	237	38	4	233	0,12	0,82	95,99	92,80
7	112	26	3	109	0,09	0,39	96,08	93,19
8	70	3	0	70	0,00	0,25	96,08	93,44
Vers.-Nr.: 3112 u. 4112 NH ₄ -Form								
1	38	1	0	38	0,00	0,13	0,00	0,13
2	21 752	23 042	2 419	19 333	72,86	68,36	72,86	68,49
3	6 877	6 623	695	6 182	20,93	21,86	93,79	90,35
4	1 356	1 290	135	1 221	4,07	4,32	97,86	94,67
5	330	304	32	298	0,96	1,05	98,82	95,72
6	135	81	9	126	0,27	0,45	99,09	96,17
7	64	35	4	60	0,12	0,21	99,21	96,38
8	45	12	1	44	0,03	0,16	99,24	96,54
Vers.-Nr.: 3113 u. 4113 Na-Form								
1	0	0	0	0	0,00	0,00	0,00	0,00
2	22 119	22 880	2 402	19 717	72,35	69,72	72,35	69,72
3	6 570	6 282	660	5 910	19,88	20,90	92,23	90,62
4	1 329	1 222	128	1 201	3,86	4,25	96,09	94,87
5	359	231	24	335	0,72	1,18	96,81	96,05
6	115	48	5	110	0,15	0,39	96,96	96,44
7	47	3	0	47	0,00	0,17	96,96	96,61
8	30	0	0	30	0,00	0,11	96,96	96,72
Vers.-Nr.: 3114 u. 4114 Ba-Form								
1	8	21	2	6	0,06	0,02	0,06	0,02
2	18 457	19 870	2 086	16 371	62,83	57,89	62,83	57,91
3	7 991	7 988	839	7 152	25,27	25,29	88,16	83,20
4	2 666	2 290	240	2 426	7,23	8,58	95,39	91,78
5	856	690	72	784	2,17	2,77	97,56	94,55
6	157	91	10	147	0,30	0,52	97,86	95,07
7	71	23	2	69	0,06	0,24	97,92	95,31
8	40	2	0	40	0,00	0,14	97,92	95,45
Vers.-Nr.: 3115 u. 4115 Y-Form								
1	184	403	42	142	1,27	0,50	1,27	0,50
2	21 846	23 441	2 461	19 385	74,13	68,55	75,40	69,05
3	7 136	6 013	631	6 505	19,01	23,00	94,41	92,05
4	1 382	1 216	128	1 254	3,86	4,43	98,27	96,48
5	356	262	28	328	0,84	1,16	99,11	97,64
6	120	78	8	112	0,24	0,40	99,35	98,04
7	58	19	2	56	0,06	0,20	99,41	98,24
8	22	6	1	21	0,03	0,07	99,44	98,31

Versuche Nr.: 3121 - 3125 und 4121 - 4125
 Nuklid: 90-Sr/Y Beladung: 31 600 Imp/Min.
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,5 n HCl

Fkt. Nr.:	Anfangs-aktivität		von der Anfangsaktivität entfallen auf		eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	
	Imp/Min	Imp/Min	90-Sr Imp/Min	90-Y Imp/Min	90-Sr %	90-Y %	90-Sr %	90-Y %
Vers.-Nr.: 3121 u. 4121 H-Form								
1	159	1 484	152	7	4,58	0,02	4,58	0,02
2	9 453	13 676	1 436	8 017	43,25	28,35	47,83	28,37
3	9 337	13 440	1 411	7 926	42,50	28,03	90,33	56,40
4	3 829	1 209	127	3 702	3,83	13,09	94,16	69,49
5	1 644	276	29	1 615	0,87	5,71	95,03	75,20
6	1 162	121	13	1 149	0,39	4,06	95,42	79,26
7	875	52	5	870	0,15	3,08	95,57	82,34
8	401	27	3	398	0,09	1,41	95,66	83,75
Vers.-Nr.: 3122 u. 4122 NH ₄ -Form								
1	0	0	0	0	0,00	0,00	0,00	0,00
2	15 852	19 764	2 075	13 777	62,50	48,72	62,50	48,72
3	11 357	9 302	977	10 380	29,43	36,70	91,93	85,42
4	1 895	1 212	127	1 768	3,83	6,26	95,76	91,67
5	520	228	24	496	0,72	1,75	96,48	93,42
6	216	54	6	210	0,18	0,74	96,66	94,16
7	116	20	2	114	0,06	0,40	96,72	94,56
8	81	2	0	81	0,00	0,29	96,72	94,85
Vers.-Nr.: 3123 u. 4123 Na-Form								
1	3	0	0	3	0,00	0,01	0,00	0,01
2	18 057	20 251	2 126	15 931	64,04	56,33	64,04	56,34
3	9 523	8 457	888	8 635	26,75	30,53	90,79	86,87
4	1 878	1 393	146	1 732	4,40	6,12	95,19	92,99
5	520	223	23	497	0,69	1,76	95,88	94,75
6	216	84	9	207	0,27	0,73	96,15	95,48
7	129	48	5	124	0,15	0,44	96,30	95,92
8	94	53	6	88	0,18	0,31	96,48	96,23
Vers.-Nr.: 3124 u. 4124 Ba-Form								
1	32	11	1	31	0,03	0,11	0,03	0,11
2	16 040	17 316	1 818	14 222	54,76	50,29	54,79	50,40
3	10 327	9 880	1 037	9 290	31,23	32,85	86,02	83,25
4	2 689	2 713	285	2 404	8,58	8,50	94,60	91,75
5	539	697	73	466	2,20	1,65	96,80	93,40
6	230	52	5	225	0,15	0,80	96,95	94,20
7	131	54	6	125	0,18	0,44	97,13	94,64
8	72,	9	1	71	0,03	0,25	97,16	94,89
Vers.-Nr.: 3125 u. 4125 Y-Form								
1	258	192	20	238	0,60	0,84	0,60	0,84
2	18 610	23 260	2 442	16 168	73,55	57,17	74,15	58,01
3	9 095	5 970	627	8 468	18,89	29,94	93,04	87,95
4	2 101	1 184	124	1 977	3,73	6,99	96,77	94,94
5	558	271	28	530	0,84	1,87	97,61	96,81
6	136	64	7	129	0,21	0,46	97,82	97,27
7	85	31	3	82	0,09	0,29	97,91	97,56
8	51	14	1	50	0,03	0,18	97,94	97,74

Versuche Nr.: 3131 - 3135 und 4131 - 4135
 Nuklid: ⁹⁰Sr/Y Beladung: 31 600 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	Anfangs- aktivität	End- aktivität	von der An- fangsaktivität entfallen auf		eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	
	Imp/Min	Imp/Min	⁹⁰ Sr Imp/Min	⁹⁰ Y Imp/Min	⁹⁰ Sr %	⁹⁰ Y %	⁹⁰ Sr %	⁹⁰ Y %
Vers.-Nr.: 3131 u. 4131 H-Form								
1	10	54	6	4	0,18	0,14	0,18	0,14
2	1 889	14 171	1 488	401	44,80	1,42	44,98	1,56
3	2 648	12 781	1 342	1 306	40,43	4,62	85,41	6,18
4	1 519	2 314	243	1 276	7,32	4,51	92,73	10,69
5	1 211	578	61	1 150	1,83	4,07	94,56	14,76
6	1 080	146	15	1 065	0,45	3,77	95,01	18,53
7	930	62	7	923	0,21	3,26	95,22	21,79
8	861	54	6	855	0,18	3,02	95,40	24,81
Vers.-Nr.: 3132 u. 4132 NH ₄ -Form								
1	10	1	0	10	0,00	0,04	0,00	0,04
2	622	4 877	512	110	15,42	0,39	15,42	0,43
3	7 097	18 441	1 936	5 151	58,31	18,25	73,73	18,68
4	6 768	5 523	580	6 188	17,47	21,88	91,20	40,56
5	4 510	1 036	109	4 401	3,28	15,56	94,48	56,12
6	2 762	198	21	2 741	0,63	9,69	95,11	65,81
7	1 629	30	3	1 626	0,09	5,75	95,20	71,56
8	1 062	35	4	1 058	0,12	3,74	95,32	75,30
Vers.-Nr.: 3133 u. 4133 Na-Form								
1	0	0	0	0	0,00	0,00	0,00	0,00
2	11 872	17 609	1 849	10 023	55,69	35,44	55,69	35,44
3	9 454	9 887	1 038	8 416	31,27	29,76	86,96	65,20
4	1 945	2 049	215	1 730	6,48	6,12	93,44	71,32
5	882	591	62	820	1,87	2,90	95,31	74,22
6	545	200	21	524	0,63	1,85	95,94	76,07
7	346	78	8	338	0,24	1,20	96,18	77,27
8	233	27	3	230	0,09	0,81	96,27	78,08
Vers.-Nr.: 3134 u. 4134 Ba-Form								
1	16	70	7	9	0,21	0,03	0,21	0,03
2	1 580	14 505	1 523	57	45,87	0,20	46,08	0,23
3	2 192	11 121	1 168	1 024	35,18	3,62	81,26	3,85
4	6 581	3 879	407	6 174	12,26	61,83	93,52	25,68
5	5 419	744	78	5 341	2,35	18,89	95,87	44,57
6	3 353	185	19	3 334	0,57	11,79	96,44	56,36
7	2 311	61	6	2 305	0,18	8,15	96,62	64,51
8	1 700	21	2	1 698	0,06	6,00	96,68	70,51
Vers.-Nr.: 3135 u. 4135 Y-Form								
1	410	140	15	395	0,45	1,40	0,45	1,40
2	12 682	22 740	2 388	10 294	71,93	36,40	72,38	37,80
3	8 509	6 340	666	7 843	20,06	27,73	92,44	65,53
4	3 412	987	104	3 308	3,13	11,70	95,57	77,23
5	1 715	257	27	1 688	0,81	5,97	96,38	83,20
6	1 005	95	10	995	0,30	3,52	96,68	86,72
7	661	37	4	657	0,12	2,32	96,80	89,04
8	425	11	1	424	0,03	1,50	96,83	90,54

Versuche Nr.: 3211 - 3215 und 4211 - 4215
 Nuklid: 90-Sr/Y Beladung: 31 600 Imp/Min.
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Fkt. Nr.:	Anfangs- aktivität	End- aktivität	von der An- fangsaktivität entfallen auf		eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	
	Imp/Min	Imp/Min	90-Sr Imp/Min	90-Y Imp/Min	90-Sr %	90-Y %	90-Sr %	90-Y %
Vers.-Nr.: 3211 u. 4211 H-Form								
1	3 386	3 378	344	8	10,36	0,03	10,36	0,03
2	13 638	21 441	2 251	11 387	67,80	40,27	78,16	40,30
3	10 166	4 893	514	9 652	15,48	34,13	93,64	74,43
4	2 868	1 009	106	2 762	3,19	9,77	96,83	84,20
5	871	356	37	834	1,12	2,95	97,95	87,15
6	380	83	9	371	0,27	1,31	98,22	88,46
7	204	75	8	196	0,24	0,69	98,46	89,15
8	141	51	5	136	0,15	0,48	98,61	89,63
Vers.-Nr.: 3212 u. 4212 NH ₄ -Form								
1	4	1	0	4	0,00	0,01	0,00	0,01
2	15 277	23 556	2 473	12 804	74,49	45,28	74,49	45,29
3	10 876	5 680	596	10 280	17,94	36,35	92,43	81,64
4	2 680	1 033	108	2 572	3,25	9,09	95,68	90,73
5	825	193	20	805	0,60	2,85	96,28	93,58
6	349	49	5	344	0,15	1,22	96,43	94,80
7	210	15	2	208	0,06	0,74	96,49	95,54
8	127	8	1	126	0,03	0,45	96,52	95,99
Vers.-Nr.: 3213 u. 4213 Na-Form								
1	0	0	0	0	0,00	0,00	0,00	0,00
2	14 991	21 665	2 275	12 716	68,52	44,96	68,52	44,96
3	10 382	6 769	711	9 671	21,42	34,20	89,94	79,16
4	2 929	1 587	167	2 762	5,03	9,77	94,97	88,93
5	898	383	40	858	1,20	3,03	96,17	91,96
6	382	109	11	371	0,33	1,31	96,50	93,27
7	478	69	7	471	0,21	1,67	96,71	94,94
8	226	8	1	225	0,03	0,80	96,74	95,74
Vers.-Nr.: 3214 u. 4214 Ba-Form								
1	30	228	24	6	0,72	0,02	0,72	0,02
2	11 699	23 581	2 476	9 223	74,58	32,61	75,30	32,63
3	11 155	5 648	593	10 562	17,86	37,35	93,16	69,98
4	3 179	1 087	114	3 065	3,43	10,84	96,50	80,82
5	1 055	251	26	1 029	0,78	3,64	97,37	84,46
6	446	74	8	438	0,24	1,55	97,61	86,01
7	242	21	2	240	0,06	0,84	97,67	86,85
8	138	8	1	137	0,03	0,48	97,70	87,33
Vers.-Nr.: 3215 u. 4215 Y-Form								
1	1 356	3 502	368	988	11,08	3,49	11,08	3,49
2	21 516	22 926	2 407	19 109	72,50	67,57	83,58	71,06
3	5 748	3 307	347	5 401	10,45	19,10	94,03	90,16
4	1 231	613	64	1 167	1,93	4,13	95,96	94,29
5	349	136	14	335	0,42	1,18	96,38	95,47
6	132	44	5	127	0,15	0,45	96,53	95,92
7	58	16	2	56	0,06	0,20	96,59	96,12
8	37	7	1	36	0,03	0,13	96,62	96,25

Versuche Nr.: 3221 - 3225 und 4221 - 4225
 Nuklid: 90-Sr/Y Beladung: 31 600 Imp/Min.
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,5 n HCl

Pkt. Nr.:	Anfangs- aktivität		von der An- fangsaktivität entfallen auf		eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	
	Imp/Min	Imp/Min	90-Sr Imp/Min	90-Y Imp/Min	90-Sr %	90-Y %	90-Sr %	90-Y %
Vers.-Nr.: 3221 u. 4221 H-Form								
1	382	3 543	372	10	11,20	0,04	11,20	0,04
2	8 320	21 183	2 224	6 096	66,99	21,56	78,19	21,60
3	8 462	4 698	493	7 969	14,85	28,18	93,04	49,78
4	3 508	1 171	123	3 385	3,70	11,97	96,74	61,75
5	1 679	382	40	1 639	1,20	5,80	97,94	67,55
6	882	105	11	871	0,33	3,08	98,27	70,63
7	548	37	4	544	0,12	1,92	98,39	72,55
8	391	27	3	388	0,09	1,37	98,48	73,92
Vers.-Nr.: 3222 u. 4222 NH ₄ -Form								
1	8	0	0	8	0,00	0,03	0,00	0,03
2	2 687	22 772	2 391	296	72,02	1,02	72,02	1,05
3	9 560	6 201	651	8 909	19,61	31,50	91,63	32,55
4	5 435	1 069	112	5 323	3,37	18,82	95,00	51,37
5	2 964	262	28	2 936	0,84	10,38	95,84	61,75
6	1 847	90	9	1 838	0,27	6,50	96,11	68,25
7	1 146	33	3	1 143	0,09	4,04	96,20	72,29
8	796	15	2	794	0,06	2,81	96,26	75,10
Vers.-Nr.: 3223 u. 4223 Na-Form								
1	6	15	2	4	0,06	0,01	0,06	0,01
2	5 421	19 680	2 066	3 355	62,23	11,86	62,29	11,87
3	8 384	8 364	878	7 506	26,45	26,54	88,74	38,41
4	5 138	1 785	187	4 951	5,63	17,51	94,37	55,92
5	2 581	453	48	2 533	1,45	8,96	95,82	64,88
6	1 402	139	15	1 387	0,45	4,90	96,27	69,78
7	894	53	6	888	0,18	3,14	96,45	72,92
8	584	24	3	581	0,09	2,05	96,54	74,97
Vers.-Nr.: 3224 u. 4224 Ba-Form								
1	90	762	80	10	2,41	0,04	2,41	0,04
2	3 864	23 082	2 424	1 440	73,01	5,09	75,42	5,13
3	5 330	5 437	571	4 759	17,20	16,83	92,62	21,96
4	4 434	1 037	109	4 325	4,28	15,29	95,90	37,25
5	3 204	270	28	3 176	0,84	11,23	96,74	48,48
6	2 325	88	9	2 316	0,27	8,19	97,01	56,67
7	1 710	37	4	1 706	0,12	6,03	97,13	62,70
8	1 298	21	2	1 296	0,06	4,58	97,19	67,28
Vers.-Nr.: 3225 u. 4225 Y-Form								
1	187	898	94	93	2,83	0,33	2,83	0,33
2	14 912	23 044	2 420	12 492	72,89	44,17	75,72	44,50
3	8 674	5 108	536	8 138	16,14	28,78	91,86	73,28
4	3 308	1 128	118	3 190	3,55	11,28	95,41	84,56
5	1 540	340	36	1 504	1,08	5,32	96,49	89,88
6	932	142	15	917	0,45	3,24	96,94	93,12
7	516	48	5	511	0,15	1,81	97,09	94,93
8	334	18	2	332	0,06	1,17	97,15	96,10

Versuche Nr.: 3231 - 3235 und 4231 - 4235
 Nuklid: 90-Sr/Y Beladung: 31 600 Imp/Min.
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	Anfangs- aktivität	End- aktivität	von der An- fangsaktivität entfallen auf		eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	
	Imp/Min	Imp/Min	90-Sr Imp/Min	90-Y Imp/Min	90-Sr %	90-Y %	90-Sr %	90-Y %
Vers.-Nr.: 3231 u. 4231 H-Form								
1	225	1 986	209	16	6,30	0,06	6,30	0,06
2	3 631	22 301	2 342	1 289	70,54	4,56	76,84	4,62
3	2 496	4 924	517	1 979	15,57	7,00	92,41	11,62
4	1 761	1 149	121	1 640	3,64	5,80	96,05	17,42
5	1 340	330	35	1 305	1,05	4,61	97,10	22,03
6	1 174	118	12	1 162	0,36	4,11	97,46	26,14
7	1 030	55	6	1 024	0,18	3,62	97,64	29,76
8	911	32	3	908	0,09	3,21	97,73	32,97
Vers.-Nr.: 3232 u. 4232 NH ₄ -Form								
1	0	0	0	0	0,00	0,00	0,00	0,00
2	1 059	9 994	1 049	10	31,60	0,04	31,60	0,04
3	1 531	14 109	1 481	50	44,61	0,18	76,21	0,22
4	607	4 054	426	181	12,83	0,64	89,04	0,86
5	399	1 034	109	290	3,28	1,03	92,32	1,89
6	389	356	37	352	1,11	1,24	93,43	3,13
7	408	167	18	390	0,54	1,38	93,97	4,51
8	419	81	8	411	0,24	1,45	94,21	5,96
Vers.-Nr.: 3233 u. 4233 Na-Form								
1	0	0	0	0	0,00	0,00	0,00	0,00
2	1 500	14 165	1 487	13	44,79	0,05	44,79	0,05
3	1 462	11 507	1 208	254	36,39	0,90	81,18	0,95
4	856	2 891	304	552	9,16	1,95	90,34	2,90
5	716	938	98	618	2,95	2,19	93,29	5,09
6	712	331	35	677	1,05	2,39	94,34	7,48
7	749	143	15	734	0,45	2,60	94,79	10,08
8	756	81	9	747	0,27	2,64	95,06	12,72
Vers.-Nr.: 3234 u. 4234 Ba-Form								
1	45	419	44	1	1,33	0,00	1,33	0,00
2	1 936	18 418	1 934	2	58,25	0,01	59,58	0,01
3	916	8 666	910	6	27,41	0,02	86,99	0,03
4	244	1 742	183	61	5,51	0,22	92,50	0,25
5	133	439	46	87	1,39	0,31	93,89	0,56
6	156	143	15	141	0,45	0,50	94,34	1,06
7	144	82	9	135	0,27	0,48	94,61	1,54
8	133	43	5	128	0,15	0,45	94,76	1,99
Vers.-Nr.: 3235 u. 4235 Y-Form								
1	870	2 747	288	582	8,67	2,06	8,67	2,06
2	10 883	21 212	2 227	8 656	67,08	30,61	75,75	32,67
3	5 554	4 701	494	5 060	14,88	17,89	90,63	50,56
4	2 447	1 191	125	2 322	3,77	8,21	94,40	58,77
5	1 536	392	41	1 495	1,23	5,29	95,63	64,06
6	954	119	12	942	0,36	3,33	95,99	67,39
7	764	57	6	758	0,18	2,68	96,17	70,07
8	574	28	3	71	0,09	2,02	96,26	72,09

Versuche Nr.: 3311, 4311; 3321, 4321; 3331, 4331.
 Nuklid: 90-Sr/Y Beladung: 31 600 Imp/Min.
 Austauscher: reine Silikat-Fällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl 0,5 n HCl 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	von der An- fangsaktivität entfallen auf		eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	
	Anfangs- aktivität	End- aktivität	90-Sr Imp/Min	90-Y Imp/Min	90-Sr %	90-Y %
	Imp/Min	Imp/Min	Imp/Min	Imp/Min	90-Sr %	90-Y %
Vers.-Nr.: 3311 u. 4311 2,0 n HCl						
1	439	1 002	105	334	3,16	1,18
2	22 731	22 961	2 411	20 320	72,62	71,85
3	6 992	7 060	741	6 251	22,32	22,10
4	320	296	31	289	0,93	1,02
5	158	133	14	144	0,42	0,51
6	65	78	8	57	0,24	0,20
7	36	51	5	31	0,15	0,11
8	20	24	3	17	0,09	0,06
Vers.-Nr.: 3321 u. 4321 0,5 n HCl						
1	600	675	71	529	2,14	1,87
2	22 869	22 484	2 361	20 508	71,11	72,52
3	7 920	7 906	830	7 090	25,00	25,07
4	125	380	40	85	1,20	0,30
5	33	106	11	22	0,33	0,08
6	11	17	2	9	0,06	0,03
7	1	7	1	0	0,03	0,00
8	0	0	0	0	0,00	0,00
Vers.-Nr.: 3331 u. 4331 0,1 n HCl						
1	93	99	10	85	0,30	0,30
2	23 419	23 441	2 461	20 958	74,13	74,11
3	7 623	7 714	810	6 813	24,40	24,09
4	325	335	35	290	1,05	1,03
5	27	25	3	24	0,09	0,08
6	5	2	0	5	0,00	0,02
7	1	1	0	1	0,00	0,00
8	0	0	0	0	0,00	0,00

Versuche Nr.: 5111 - 5115 (und 4111 - 4115)
 Nuklid: 90-Y (abgetrennt)
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Fkt. Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	Zum Vergleich: Beim Beladen mit Sr/Y-Gleichgewicht wurde bis zu dieser Fraktion eluiert % Y (Vers.-Nr.):
	Imp/Min	%		
Vers.-Nr.: 5111 H-Form Beladung: 17 490 Imp/Min.				
1	96	0,54	0,54	0,06
2	9 148	52,30	52,84	52,13
3	4 142	23,68	76,52	82,68
4	1 366	7,81	84,33	89,90
5	712	4,08	88,41	91,98
6	444	2,54	90,95	92,80
7	378	2,16	93,11	93,19
8	211	1,21	94,32	93,44
(4111)				
Vers.-Nr.: 5112 NH ₄ -Form Beladung: 23 100 Imp/Min.				
1	73	0,32	0,32	0,13
2	15 934	68,98	69,30	68,49
3	5 013	21,70	91,00	90,35
4	1 065	4,61	95,61	94,67
5	325	1,41	97,02	95,72
6	148	0,64	97,66	96,17
7	59	0,26	97,92	96,38
8	34	0,15	98,07	96,54
(4112)				
Vers.-Nr.: 5113 Na-Form Beladung: 18 290 Imp/Min.				
1	6	0,03	0,03	0,00
2	12 349	67,51	67,51	69,72
3	4 410	22,47	90,01	90,62
4	764	4,13	94,19	94,87
5	270	1,48	95,67	96,05
6	133	0,73	96,40	96,44
7	79	0,43	96,83	96,61
8	49	0,27	97,10	96,72
(4113)				
Vers.-Nr.: 5114 Ba-Form Beladung: 17 675 Imp/Min.				
1	2	0,01	0,01	0,02
2	10 060	56,93	56,94	57,91
3	4 473	25,31	82,25	83,20
4	1 555	8,80	91,05	91,78
5	535	3,03	94,08	94,55
6	198	1,12	95,20	95,07
7	106	0,60	95,80	95,31
8	44	0,25	96,05	95,45
(4114)				
Vers.-Nr.: 5115 Y-Form Beladung: 13 600 Imp/Min.				
1	31	0,23	0,23	0,50
2	9 839	72,35	72,58	69,05
3	2 528	18,59	91,17	92,03
4	565	4,15	95,32	96,48
5	258	1,88	97,20	97,64
6	163	1,20	98,40	98,04
7	43	0,32	98,72	98,24
8	38	0,28	99,00	98,31
(4115)				

Versuche Nr.: 5121 - 5125 (und 4121 - 4125)
 Nuklid: 90-Y (abgetrennt)
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,5 n HCl

Fkt. Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion		Zum Vergleich: Beim Beladen mit Sr/Y-Gleichgewicht wurde bis zu dieser Fraktion eluiert % Y (Vers.-Nr.):
	Imp/Min	%		%	
Vers.-Nr.: 5121 H-Form Beladung: 17 860 Imp/Min.					
1	102	0,57	0,57	0,02	(4121)
2	6 627	37,11	37,68	28,37	
3	3 504	19,62	57,30	56,40	
4	985	5,51	62,81	69,49	
5	546	3,06	65,87	75,20	
6	362	2,03	67,90	79,26	
7	315	1,77	69,67	82,34	
8	288	1,61	71,28	83,75	
Vers.-Nr.: 5122 NH ₄ -Form Beladung: 22 900 Imp/Min.					
1	51	0,22	0,22	0,00	(4122)
2	11 570	50,52	50,74	48,72	
3	7 921	34,59	85,33	85,42	
4	1 551	6,77	92,10	91,67	
5	486	2,12	94,22	93,42	
6	256	1,12	95,34	94,16	
7	158	0,69	96,03	94,56	
8	64	0,28	96,31	94,85	
Vers.-Nr.: 5123 Na-Form Beladung: 18 140 Imp/Min.					
1	5	0,03	0,03	0,01	(4123)
2	9 953	54,87	54,90	56,34	
3	5 645	31,12	86,02	86,87	
4	1 103	6,08	92,10	92,99	
5	368	2,03	94,13	94,75	
6	303	1,67	95,80	95,48	
7	93	0,51	96,31	95,92	
8	20	0,11	96,42	96,23	
Vers.-Nr.: 5124 Ba-Form Beladung: 17 530 Imp/Min.					
1	0	0,00	0,00	0,11	(4124)
2	8 828	50,35	50,35	50,40	
3	5 551	31,66	82,01	83,25	
4	1 334	7,61	89,62	91,75	
5	551	3,14	92,76	93,40	
6	291	1,66	94,42	94,20	
7	139	0,79	95,21	94,64	
8	70	0,40	95,61	94,89	
Vers.-Nr.: 5125 Y-Form Beladung: 13 490 Imp/Min.					
1	5	0,04	0,04	0,84	(4125)
2	8 167	60,54	60,58	58,01	
3	3 952	29,29	89,87	87,95	
4	866	6,42	96,29	94,94	
5	209	1,55	97,84	96,81	
6	65	0,48	98,32	97,27	
7	29	0,22	98,54	97,56	
8	19	0,14	98,68	97,94	

Versuche Nr.: 5131 - 5135 (und 4131 - 4135)
 Nuklid: 90-Y (abgetrennt)
 Austauscher: Zr-Phosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	Zur Vergleich: Beim Beladen mit Sr/Y-Gleichgewicht wurde bis zu dieser Fraktion eluiert % Y (Vers.-Nr.):
	Imp/Min	%		
Vers.-Nr.: 5131 H-Form Beladung: 17 770 Imp/Min.				
1	129	0,73	0,73	0,14
2	2 764	15,55	16,28	1,50
3	3 537	19,90	36,18	6,18
4	1 751	9,63	45,81	10,69
5	1 102	6,20	52,01	14,76
6	682	3,84	55,85	18,53
7	494	2,78	58,63	21,79
8	374	2,06	60,69	24,81
(4131)				
Vers.-Nr.: 5132 NH ₄ -Form Beladung: 22 700 Imp/Min.				
1	12	0,05	0,05	0,04
2	66	0,29	0,34	0,43
3	3 589	15,81	16,15	18,68
4	5 177	22,81	38,96	40,56
5	3 614	15,92	54,88	56,12
6	2 276	10,03	64,91	65,81
7	1 429	6,30	71,21	71,56
8	997	4,39	75,60	75,30
(4132)				
Vers.-Nr.: 5133 Na-Form Beladung: 17 700 Imp/Min.				
1	6	0,03	0,03	0,00
2	5 804	32,79	32,82	35,14
3	4 500	25,42	58,24	65,20
4	1 680	9,49	67,73	71,32
5	823	4,65	72,38	74,32
6	597	3,37	75,75	76,07
7	333	1,88	77,63	77,27
8	103	0,58	78,21	78,08
(4133)				
Vers.-Nr.: 5134 Ba-Form Beladung: 17 390 Imp/Min.				
1	0	0,00	0,00	0,03
2	6	0,03	0,03	0,23
3	1 550	9,91	8,94	3,35
4	4 438	25,52	34,46	25,68
5	2 845	16,36	50,80	44,57
6	1 970	11,33	62,15	56,35
7	1 430	8,22	70,37	64,51
8	900	5,17	75,54	70,51
(4134)				
Vers.-Nr.: 5135 Y-Form Beladung: 13 380 Imp/Min.				
1	13	0,10	0,10	1,40
2	5 596	41,82	41,92	37,10
3	3 414	25,51	67,43	65,3
4	1 555	11,62	79,05	77,23
5	745	5,57	84,62	83,20
6	417	3,12	87,74	86,72
7	296	2,21	89,95	89,04
8	214	1,60	91,55	90,54
(4135)				

Versuche Nr.: 5211 - 5215 (und 4211 - 4215)
 Nuklid: 90-Y (abgetrennt)
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Fkt. Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	%	Zum Vergleich: Beim Beladen mit Sr/Y-Gleichgewicht wurde bis zu dieser Fraktion eluiert % Y (Vers.-Nr.):
	Imp/Min	%			
Vers.-Nr.: 5211 H-Form Beladung: 17 490 Imp/Min.					
1	0	0,00	0,00	0,03	(4211)
2	8 378	47,90	47,90	40,30	
3	4 791	27,39	75,29	74,43	
4	1 231	7,04	82,33	84,20	
5	765	4,37	86,70	87,15	
6	482	2,76	89,46	88,46	
7	319	1,82	91,28	89,15	
8	179	1,02	92,30	89,63	
Vers.-Nr.: 5212 NH ₄ -Form Beladung: 18 750 Imp/Min.					
1	43	0,23	0,23	0,01	(4212)
2	9 325	49,74	49,97	45,29	
3	5 942	31,69	81,66	81,64	
4	1 554	8,29	89,95	90,73	
5	539	2,87	92,82	93,58	
6	310	1,65	94,47	94,80	
7	175	0,93	95,40	95,54	
8	122	0,65	96,05	95,99	
Vers.-Nr.: 5213 Na-Form Beladung: 17 560 Imp/Min.					
1	21	0,12	0,12	0,00	(4213)
2	7 331	41,75	41,87	44,96	
3	5 451	31,05	72,92	79,16	
4	1 812	10,32	83,24	88,93	
5	860	4,90	88,14	91,96	
6	439	2,50	90,64	93,27	
7	281	1,60	92,24	94,94	
8	187	1,07	93,31	95,74	
Vers.-Nr.: 5214 Ba-Form Beladung: 17 250 Imp/Min.					
1	0	0,00	0,00	0,02	(4214)
2	4 691	27,19	27,19	32,63	
3	7 564	43,84	71,03	69,98	
4	1 723	9,99	81,02	80,82	
5	534	3,10	84,12	84,46	
6	230	1,33	85,45	86,01	
7	137	0,79	86,24	86,65	
8	114	0,61	86,85	87,33	
Vers.-Nr.: 5215 Y-Form Beladung: 13 275 Imp/Min.					
1	36	0,27	0,27	3,49	(4215)
2	7 627	57,45	57,72	71,06	
3	3 934	29,63	87,35	90,16	
4	810	6,10	93,45	94,29	
5	301	2,27	95,72	95,47	
6	95	0,72	96,44	95,92	
7	30	0,23	96,67	96,12	
8	21	0,16	96,83	96,25	

Versuche Nr.: 5221 - 5225 (und 4221 - 4225)
 Nuklid: 90-Y (abgetrennt)
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,5 n HCl

Fkt. Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	Zum Vergleich: Beim Beladen mit Sr/Y-Gleichgewicht wurde bis zu dieser Fraktion eluiert % Y (Vers.-Nr.):
	Imp/Min	%		
Vers.-Nr.: 5221 H-Form Beladung: 17 950 Imp/Min.				
1	13	0,07	0,07	0,04
2	86	0,48	0,55	21,60
3	4 337	24,17	24,72	49,78
4	4 040	22,51	47,23	61,75
5	2 230	12,42	59,65	67,55
6	1 221	6,80	66,45	70,63
7	787	4,38	70,83	72,55
8	347	1,93	72,76	73,92
(4221)				
Vers.-Nr.: 5222 NH ₄ -Form Beladung: 18 575 Imp/Min.				
1	20	0,11	0,11	0,03
2	1 484	7,99	8,10	1,05
3	4 212	22,68	30,78	32,55
4	3 301	17,77	48,55	51,37
5	2 090	11,25	59,80	61,75
6	1 311	7,06	66,86	68,25
7	931	5,01	71,87	72,29
8	635	3,42	75,29	75,10
(4222)				
Vers.-Nr.: 5223 Na-Form Beladung: 17 420 Imp/Min.				
1	31	0,18	0,18	0,01
2	3 273	18,79	18,97	11,87
3	4 107	23,58	42,55	38,41
4	2 446	14,04	56,59	55,92
5	1 487	8,54	65,13	64,88
6	885	5,08	70,21	69,78
7	460	2,64	72,85	72,92
8	308	1,77	74,62	74,97
(4223)				
Vers.-Nr.: 5224 Ba-Form Beladung: 17 070 Imp/Min.				
1	0	0,00	0,00	0,04
2	867	5,08	5,08	5,13
3	2 890	16,93	22,01	21,96
4	2 595	15,20	37,21	37,25
5	2 033	11,91	49,12	48,48
6	1 499	8,78	57,90	56,67
7	942	5,52	63,42	62,70
8	425	2,49	65,91	67,28
(4224)				
Vers.-Nr.: 5225 Y-Form Beladung: 13 170 Imp/Min.				
1	13	0,10	0,10	0,33
2	6 198	47,06	47,16	44,50
3	3 701	28,10	75,26	73,28
4	1 359	10,32	85,58	84,56
5	613	4,65	90,23	89,88
6	407	3,09	93,32	93,12
7	221	1,68	95,00	94,93
8	174	1,32	96,32	96,10
(4225)				

Versuche Nr.: 5231 - 5235 (und 4231 - 4235)
 Nuklid: 90-Y (abgetrennt)
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	%	Zum Vergleich: Beim Beladen mit Sr/Y-Gleichgewicht wurde bis zu dieser Fraktion eluiert % Y (Vers.-Nr.):
	Imp/Min	%			
Vers.-Nr.: 5231 H-Form Beladung: 18 045 Imp/Min.					
1	2	0,01	0,01	0,06	(4231)
2	265	1,47	1,48	4,62	
3	316	1,75	3,23	11,62	
4	331	1,83	5,06	17,42	
5	323	1,79	6,85	22,03	
6	345	1,91	8,76	26,14	
7	351	1,94	10,70	29,76	
8	335	1,86	12,56	32,97	
Vers.-Nr.: 5232 NH ₄ -Form Beladung: 18 425 Imp/Min.					
1	8	0,04	0,04	0,00	(4232)
2	17	0,09	0,13	0,04	
3	49	0,27	0,40	0,22	
4	144	0,78	1,18	0,86	
5	168	0,91	2,09	1,89	
6	205	1,11	3,20	3,13	
7	253	1,37	4,57	4,51	
8	275	1,49	6,06	5,96	
Vers.-Nr.: 5233 Na-Form Beladung: 17 280 Imp/Min.					
1	0	0,00	0,00	0,00	(4233)
2	14	0,08	0,08	0,05	
3	97	0,56	0,64	0,95	
4	308	1,78	2,42	2,90	
5	503	2,91	5,33	5,09	
6	446	2,58	7,91	7,48	
7	456	2,64	10,55	10,08	
8	466	2,70	13,25	12,72	
Vers.-Nr.: 5234 Ba-Form Beladung: 16 890 Imp/Min.					
1	0	0,00	0,00	0,00	(4234)
2	2	0,01	0,01	0,01	
3	14	0,08	0,09	0,03	
4	52	0,31	0,40	0,25	
5	84	0,50	0,90	0,56	
6	120	0,71	1,61	1,06	
7	92	0,55	2,16	1,54	
8	81	0,48	2,64	1,99	
Vers.-Nr.: 5235 Y-Form Beladung: 13 065 Imp/Min.					
1	287	2,20	2,20	2,06	(4235)
2	3 723	28,50	30,70	32,67	
3	2 397	18,35	49,05	50,56	
4	1 327	10,16	59,21	58,77	
5	711	5,44	64,65	64,06	
6	444	3,40	68,05	67,39	
7	325	2,49	70,54	70,07	
8	253	1,94	72,48	72,09	

Versuche Nr.: 5311 (4311) 5321 (4321) 5331 (4331)
 Nuklid: 90-Y (abgetrennt)
 Austauscher: reine Silikat-Fällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl 0,5 n HCl 0,1 n HCl

Fkt. Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	Zum Vergleich: Beim Beladen mit Sr/Y-Gleichgewicht wurde bis zu dieser Fraktion eluiert % Y (Vers.-Nr.):	
	Imp/Min	%		%	
Vers.-Nr.: 5311 2,0 n HCl Beladung: 34 100 Imp/Min.					
1	761	2,23	2,23	1,18	(4311)
2	24 859	72,90	75,13	73,03	
3	7 734	22,68	97,81	95,13	
4	532	1,56	99,37	96,15	
5	78	0,23	99,60	96,66	
6	20	0,06	99,66	96,86	
7	9	0,03	99,69	96,97	
8	1	0,00	99,69	97,03	
Vers.-Nr.: 5321 0,5 n HCl Beladung: 33 750 Imp/Min.					
1	590	1,75	1,75	1,87	(4321)
2	24 700	73,19	74,94	74,39	
3	7 680	22,76	97,70	99,46	
4	616	1,83	99,53	99,76	
5	81	0,24	99,77	99,84	
6	19	0,06	99,83	99,87	
7	7	0,02	99,85	99,87	
8	0	0,00	99,85	99,87	
Vers.-Nr.: 5331 0,1 n HCl Beladung: 33 420 Imp/Min.					
1	11	0,03	0,03	0,30	(4331)
2	25 441	76,13	76,16	74,41	
3	7 503	22,45	98,61	98,50	
4	415	1,24	99,85	99,53	
5	36	0,11	99,96	99,61	
6	6	0,01	99,97	99,63	
7	1	0,00	99,97	99,63	
8	0	0,00	99,97	99,63	

Versuch Nr.: 5216
 Nuklid: 90-Y (abgetrennt) Beladung: 16 975 Imp/Min
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung Tl-Form
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Fraktion Nr.:	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion
	Imp/Min	%	%
1	9	0,05	0,05
2	11 050	65,10	65,15
3	3 826	22,54	87,69
4	625	3,68	91,37
5	265	1,56	92,93
6	156	0,92	93,85
7	96	0,57	94,42
8	75	0,44	94,86

Versuch Nr.: 6211 (weitgehend analog zu 1211 und 5211)
 Nuklide: 204-Tl und 90-Y (abgetrennt)
 Austauscher: Zr-Hypophosphat/Silikat-Mischfällung
 Elutionsmittel: 2,0 n HCl

Beladung: 204-Tl 5 320 Imp/Min.
 90-Y 17 980 Imp/Min.

Fkt. Nr.:	Anfangs- aktivität (Tl + Y) Imp/Min	End- aktivität nach 10% _Y (Tl) Imp/Min	Differenz zwi- schen Anfangs- und Endaktivität (Y) Imp/Min	eluiert in dieser Fraktion		eluiert bis zu dieser Fraktion	
				% Tl	% Y	% Tl	% Y
1	0	0	0	0,00	0,00	0,00	0,00
2	8 293	3	8 290	0,06	46,11	0,06	46,11
3	7 903	3 148	4 755	59,17	26,45	59,23	72,56
4	3 652	1 825	1 827	34,30	10,16	93,53	82,72
5	1 013	184	829	3,46	4,61	96,99	87,33
6	535	49	486	0,92	2,70	97,91	90,03
7	347	22	325	0,41	1,81	98,32	91,84
8	195	12	183	0,23	1,02	98,55	92,86

V. KURVEN.

Im folgenden Teil sind die zu den Abschnitten II B und II C gehörenden Elutionskurven wiedergegeben. Es wurden die bis zur n-ten Fraktion erzielten Ausbeuten in Prozent der eingesetzten Aktivität gegen die n-te Fraktion, d. h. gegen das Elutionsvolumen, aufgetragen. Die Fraktionen hatten die einheitliche Größe von 3 ml.

Jede Seite zeigt den Elutionsverlauf aller untersuchten Nuklide bei den jeweils oben angeführten Bedingungen (Austauscher, Form, Elutionsmittel). Nach diesen Bedingungen erfolgte auch die Anordnung der Diagramme:

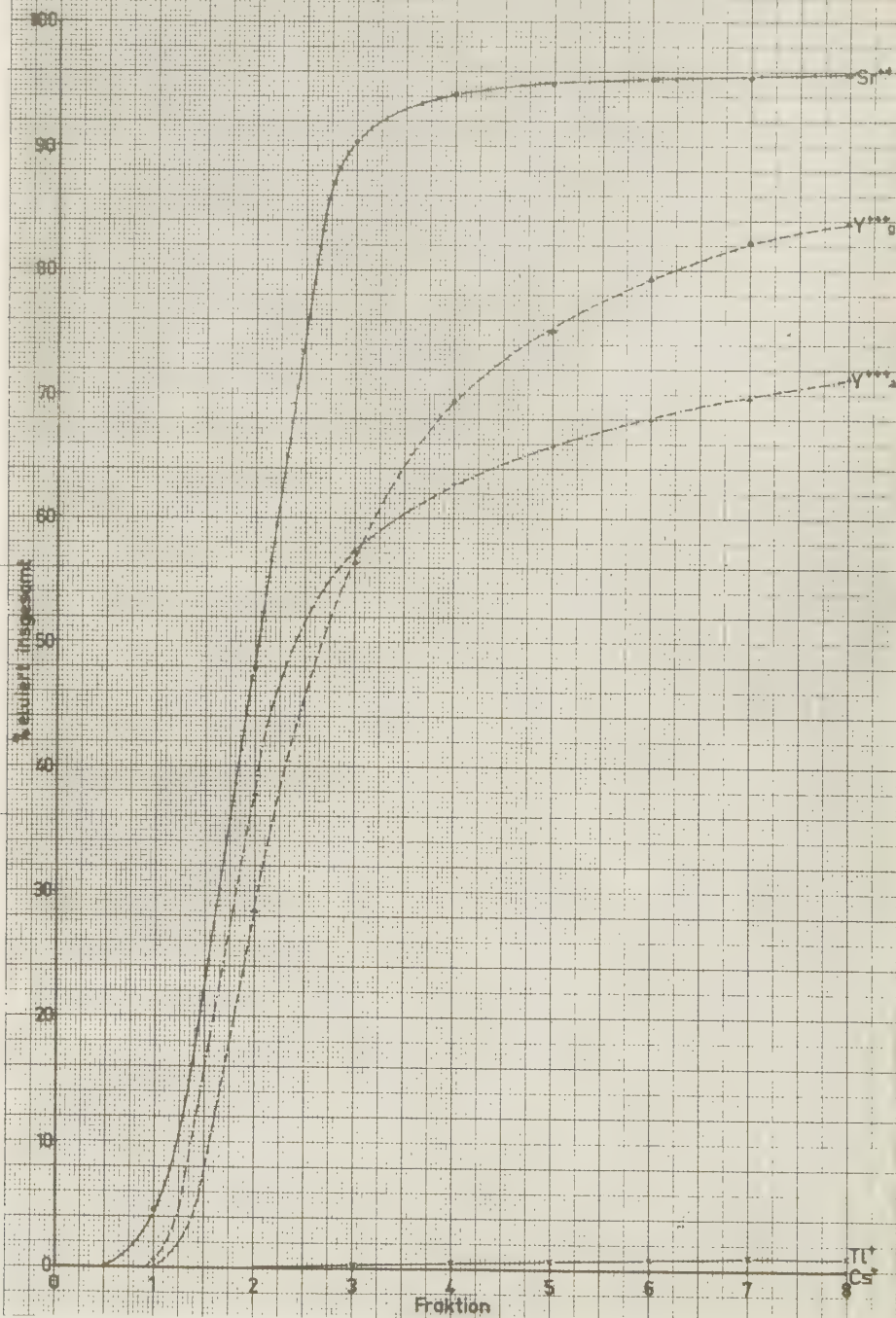
	Seite
A. Austauscher:	
Zirkonphosphat/Silikat-Mischfällung	89
H-Form	89
NH ₄ -Form	92
Na-Form	95
Ba-Form	98
Y-Form	101
B. Austauscher:	
Zirkonhypophosphat/Silikat-Mischfällung	104
H-Form	104
NH -Form	107
Na-Form	110
Ba-Form	113
Y-Form	116

Die Kurven sind mit den Sympolen der Nuklide gekennzeichnet. Bei ⁹⁰Y bezieht sich die mit Y⁺⁺⁺a bezeichnete Kurve auf den Elutionsverlauf bei Verwendung von abgetrenntem Yttrium, die mit Y⁺⁺⁺g bezeichnete auf die Versuche mit Sr/Y-Gleichgewichtslösungen.

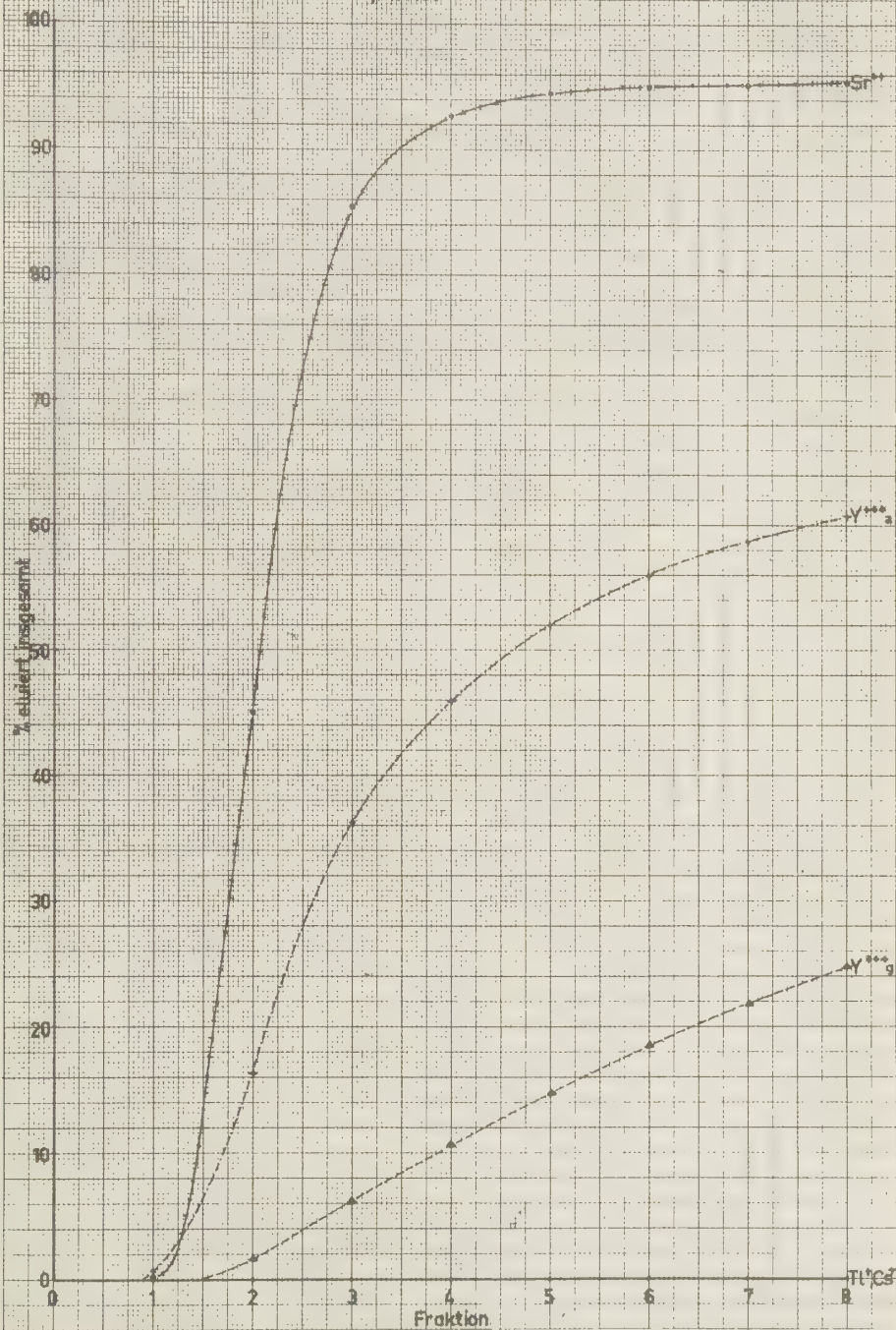
Zr-Phosphat/Silber
H. Fern
20nHCl



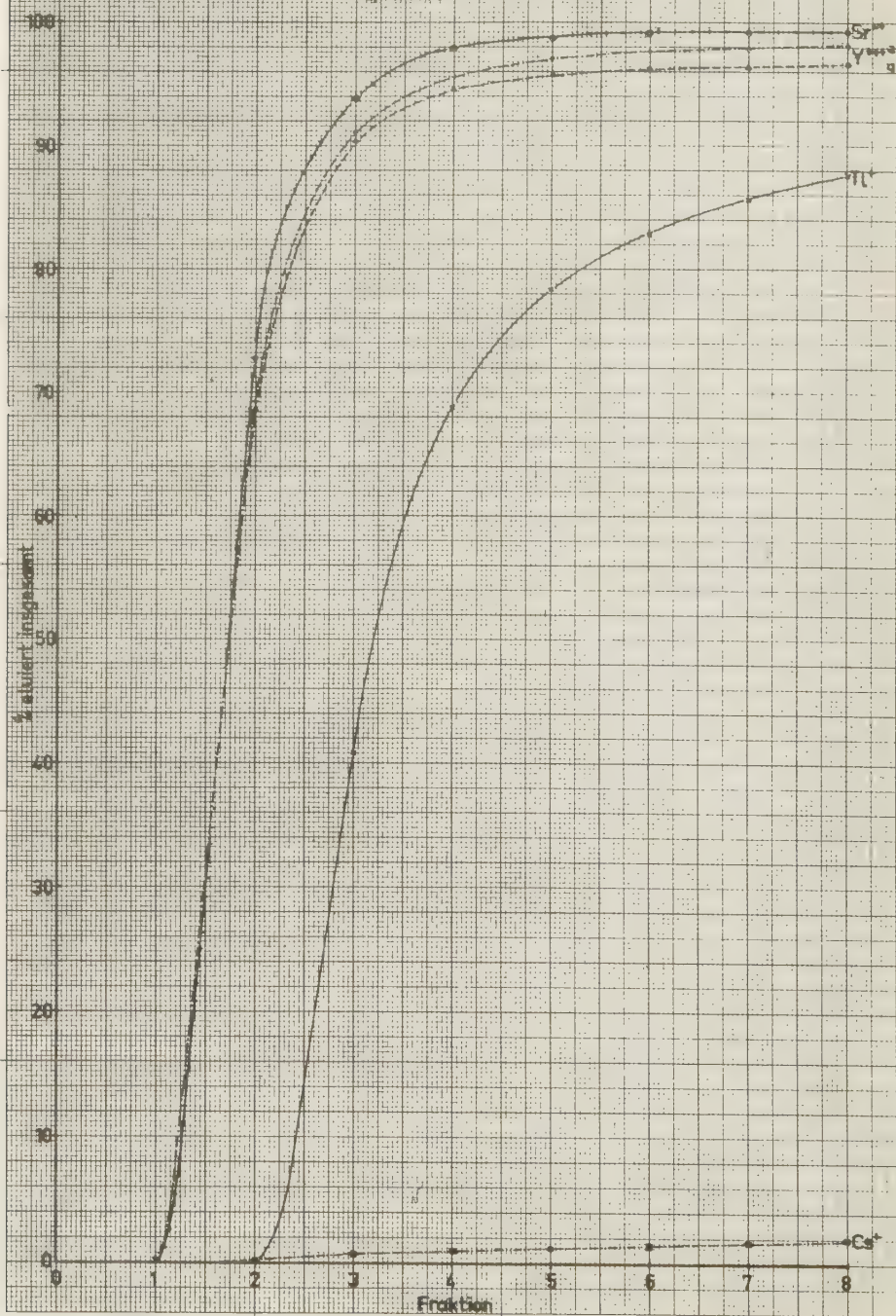
- 90 -
Zr-Phosphat/Silikat
H-Form
0.5n HCl



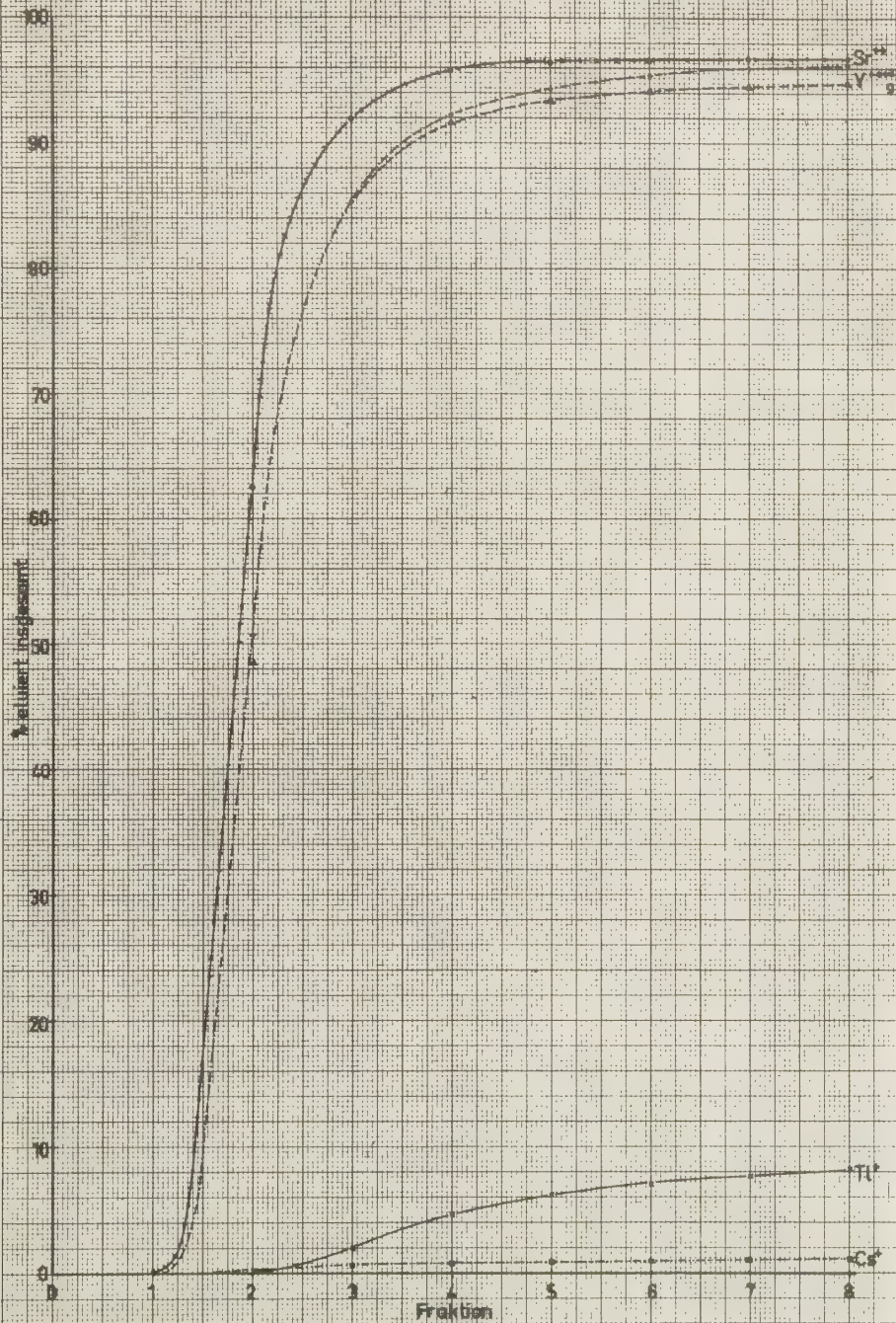
- 91 -
Zr-Phosphat/Silikat
H-Form
0,1 n HCl



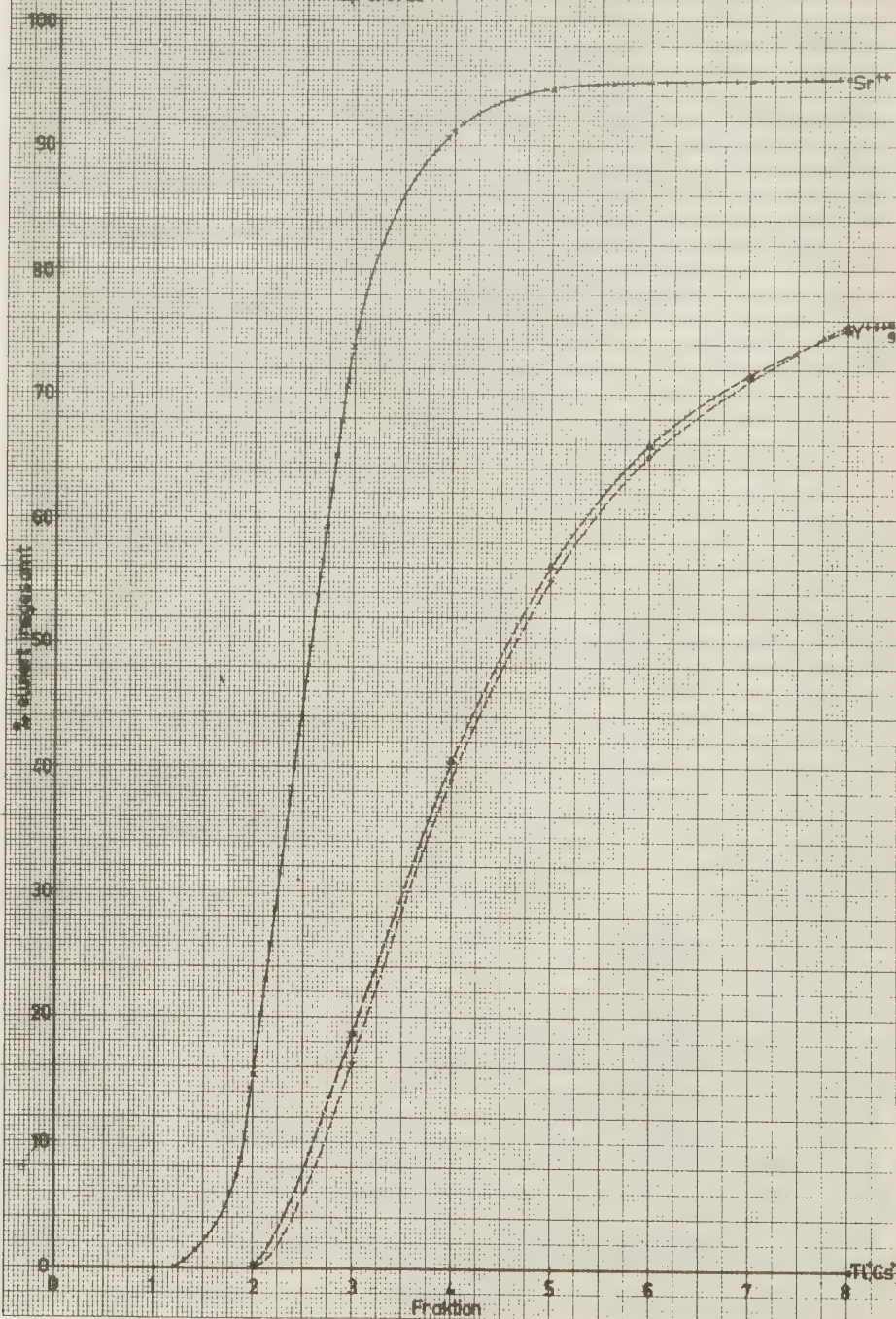
Zr-Phosphat/Silikat
 NH_4 -Form
 2.0n HCl



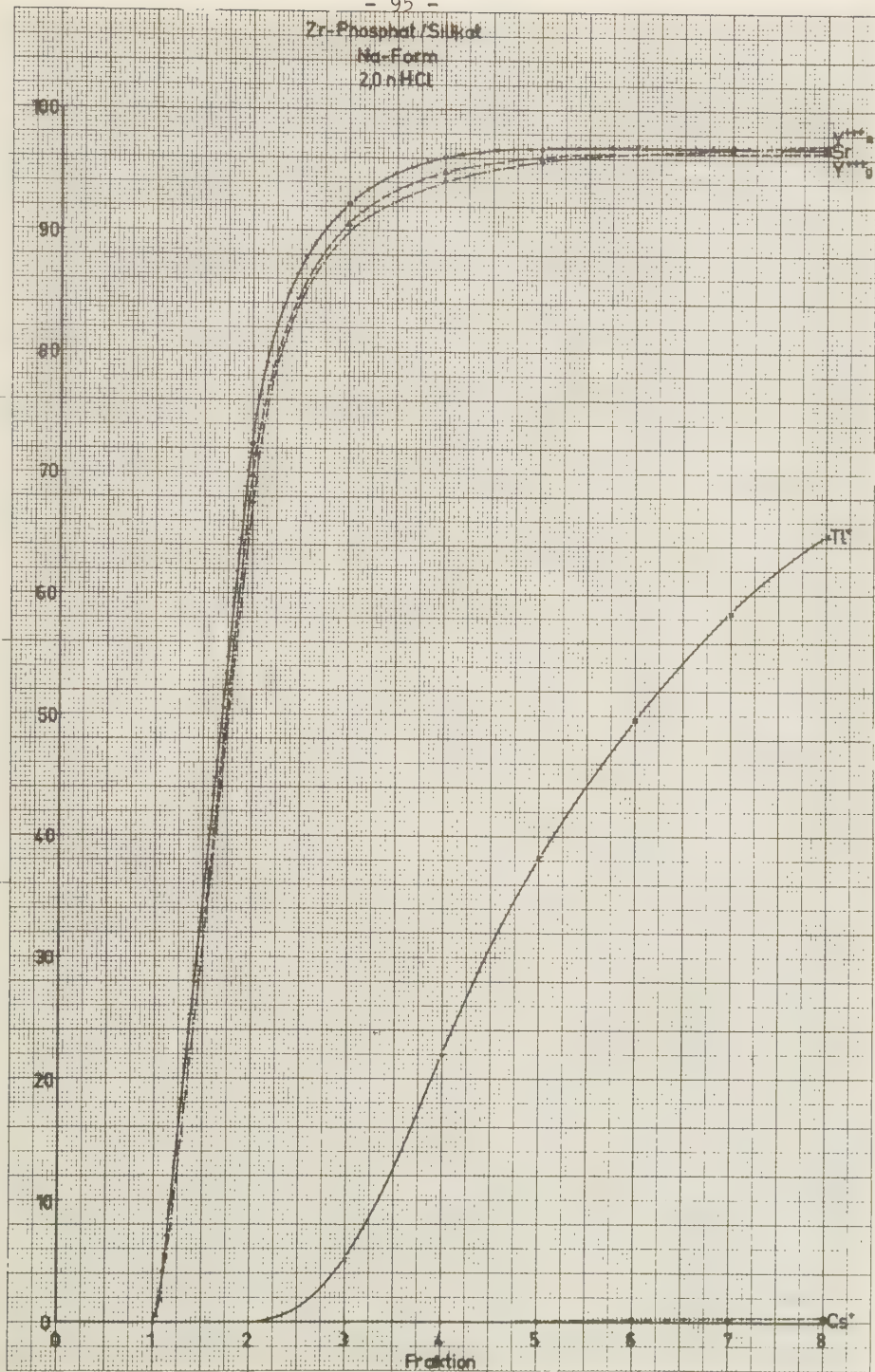
Zr-Phosphat/Silikat
NH₄-Form
85 h HCl



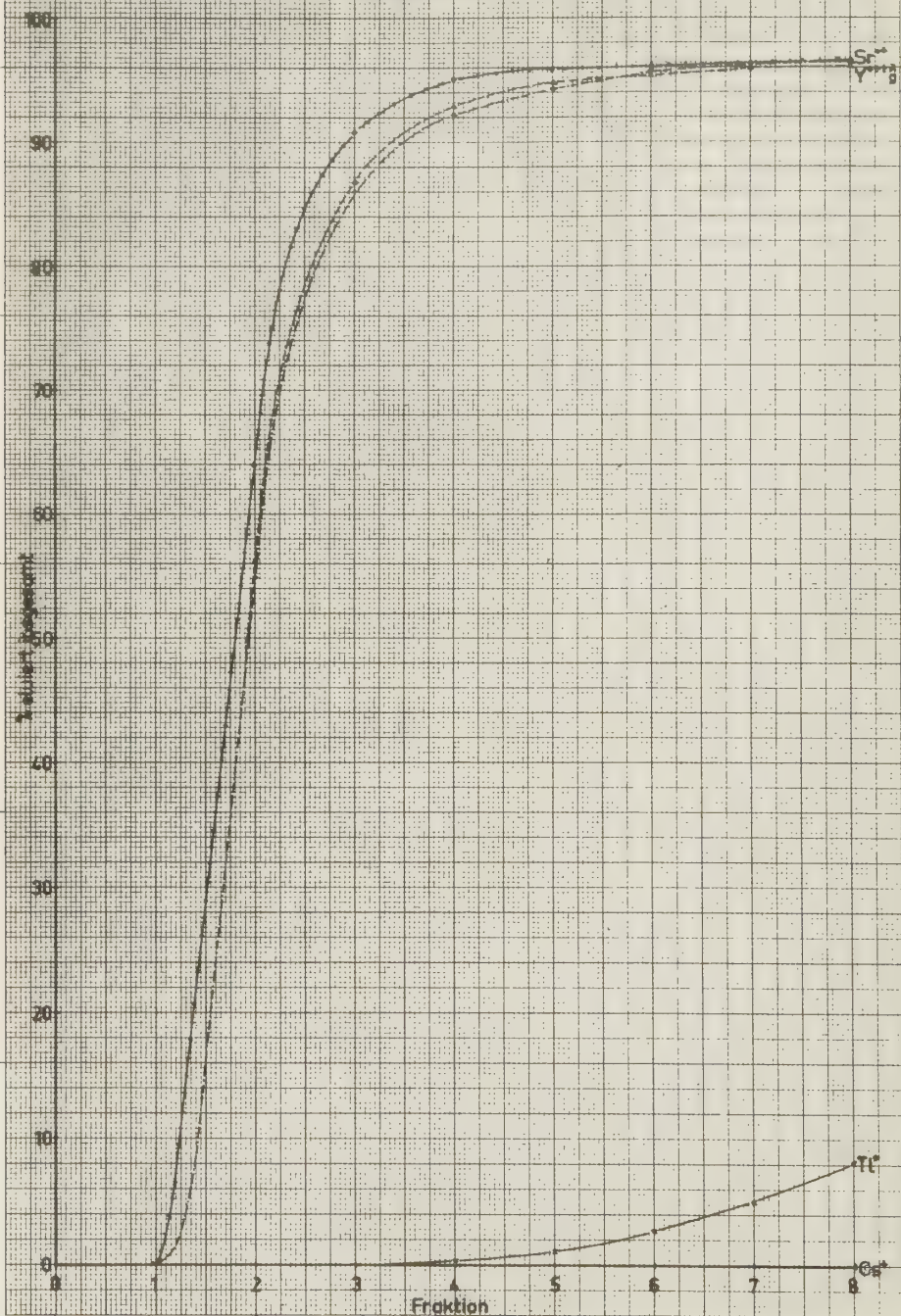
Zr-Phosphat/Silikat

 NH_4 -Form 0.1 n HCl 

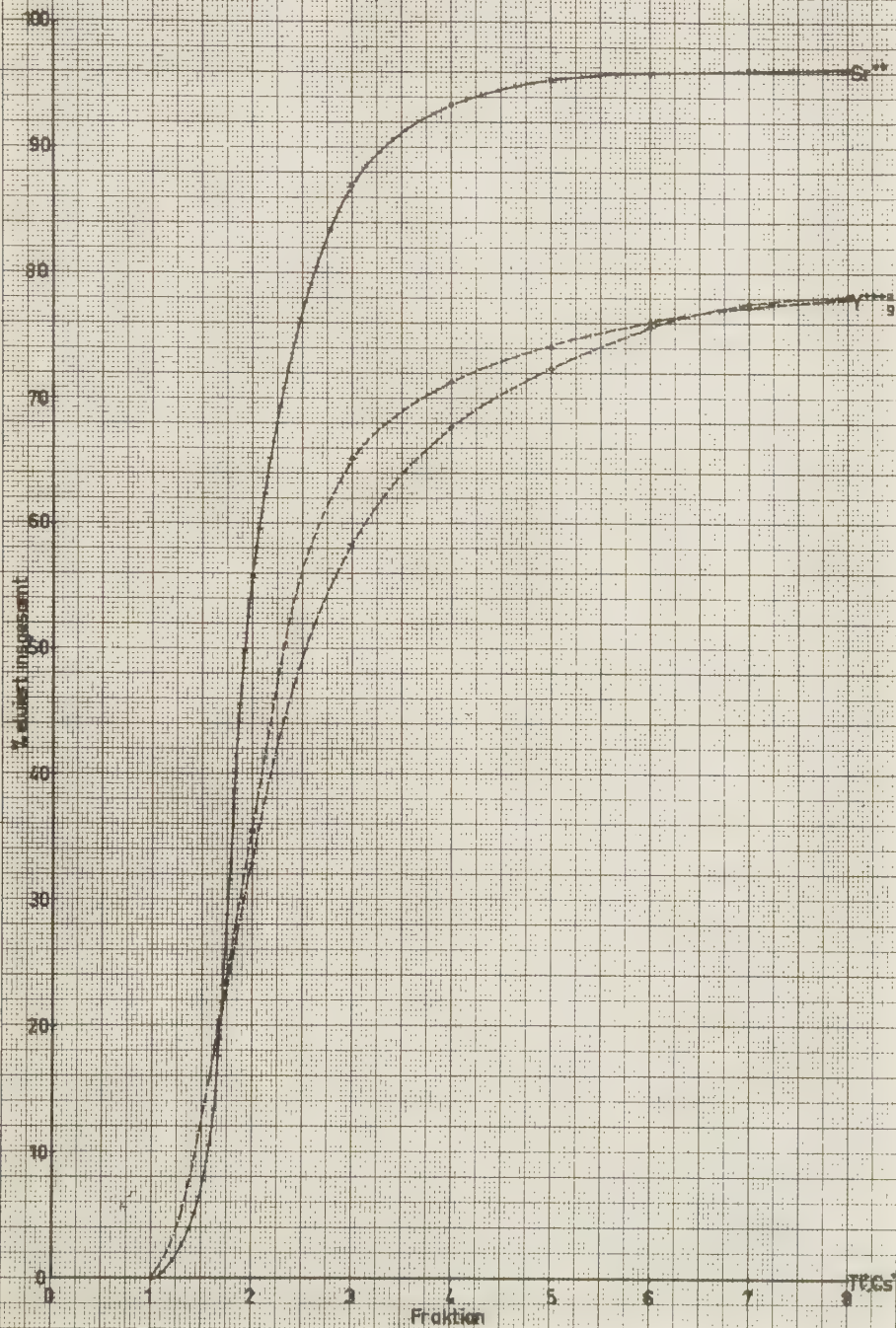
Zr-Phosphat/Silikat
Na-Form
2.0 n HCl



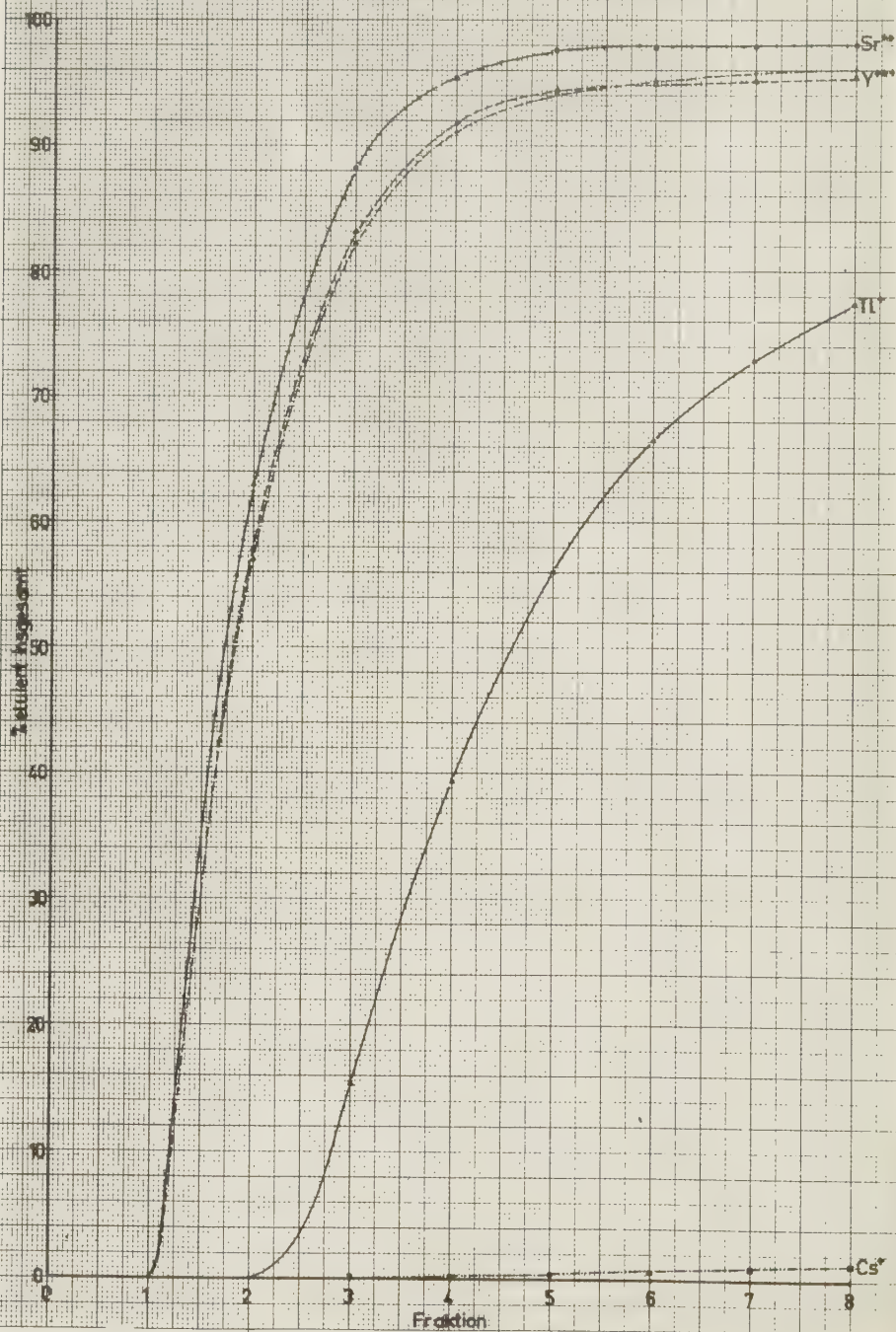
Zr-Phosphat / Silikat
Ma-Renn
0,5 n HCl



Zr-Phosphat/Silikat
Na-Form
0,1 n HCl



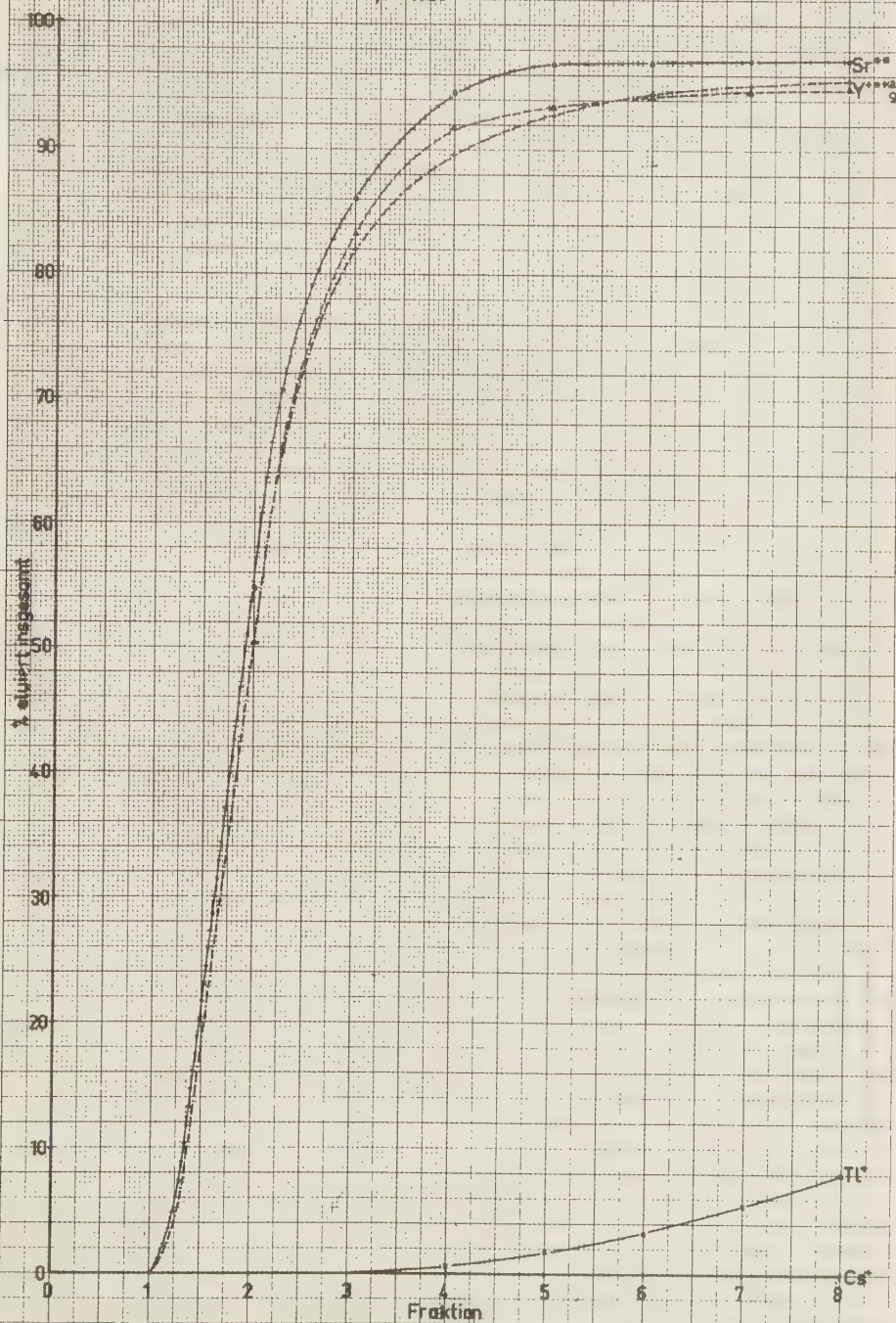
- 98 -
Zr-Phosphat/Silikat
Ba-Form
2.0 n HCl



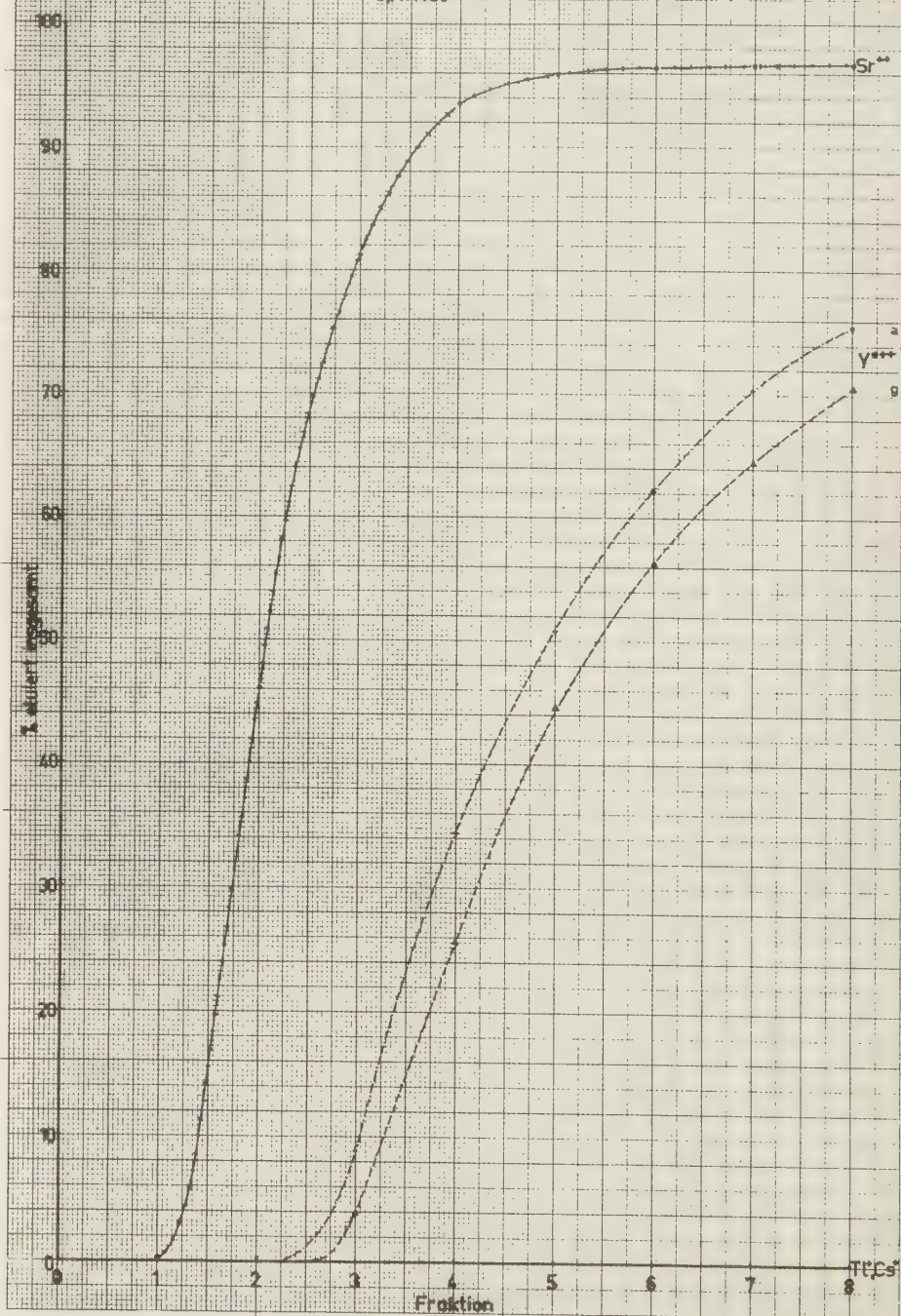
Zr-Phosphat/Silikat

Ba-Form

0,5 n HCl



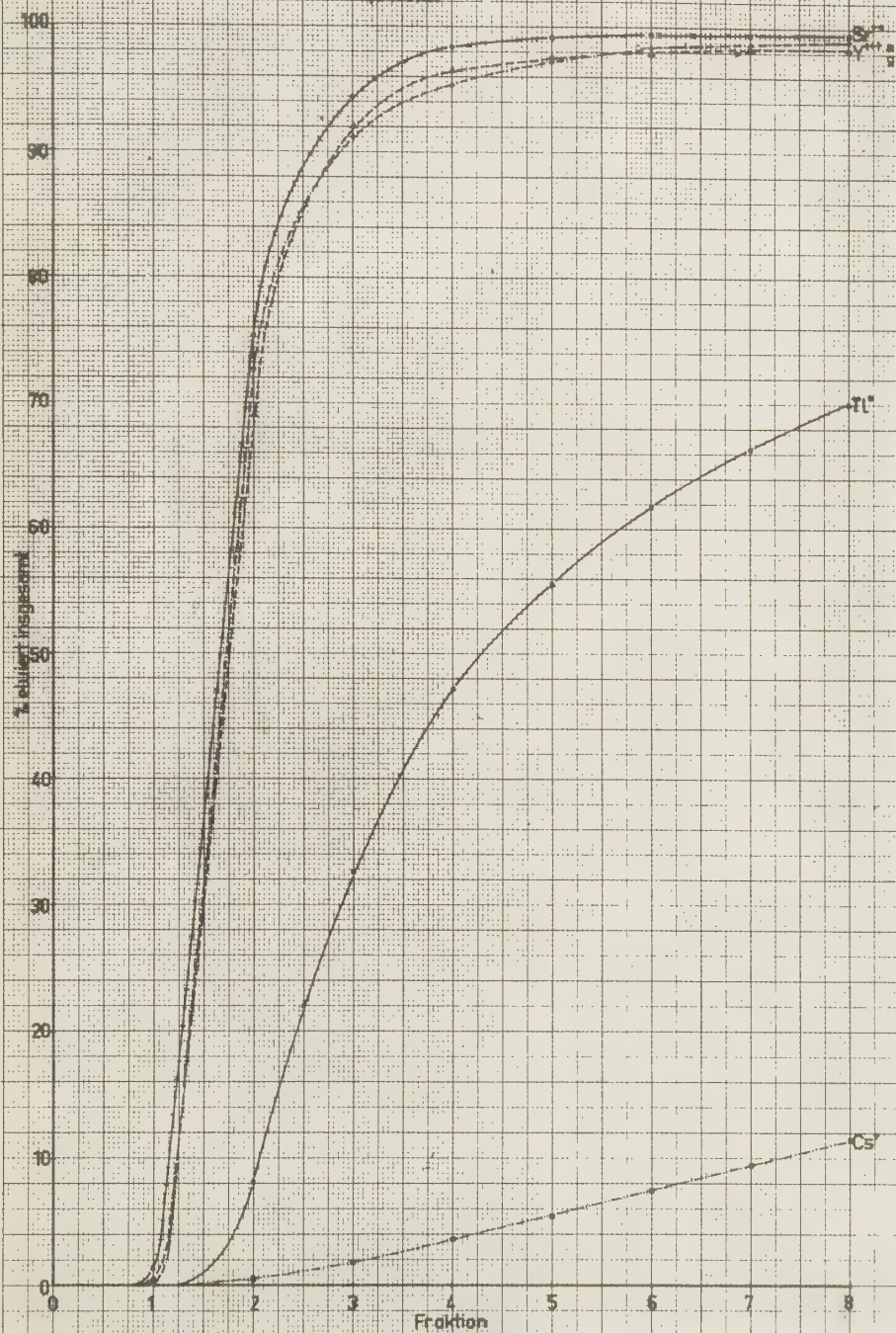
Zr-Phosphat/Silikat
Ba-Form
0,1 n HCl



Zr-Phosphat/Silikat

Y-Form

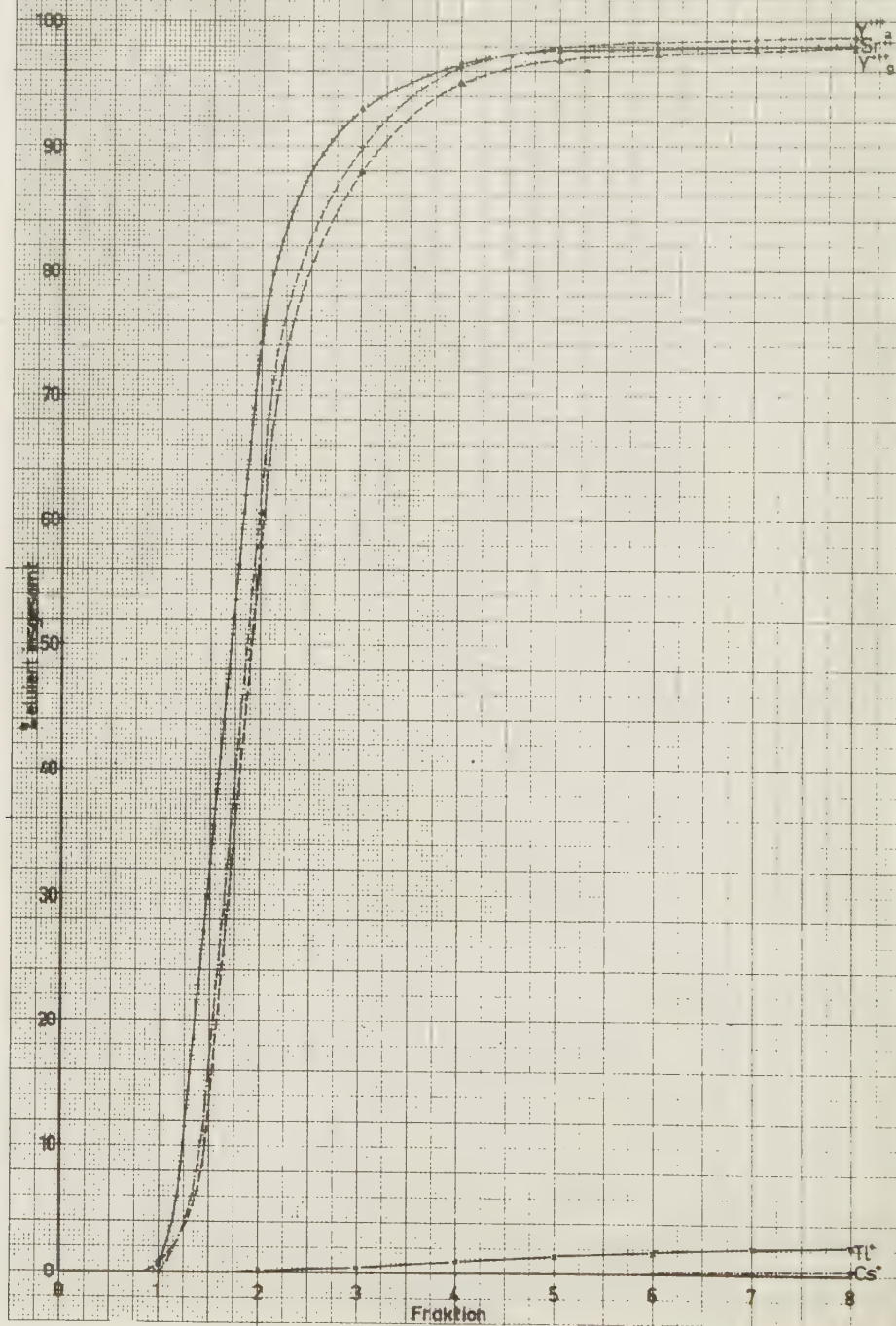
2.0 n HCl



Zr-Phosphat/Silikat

Y-Form

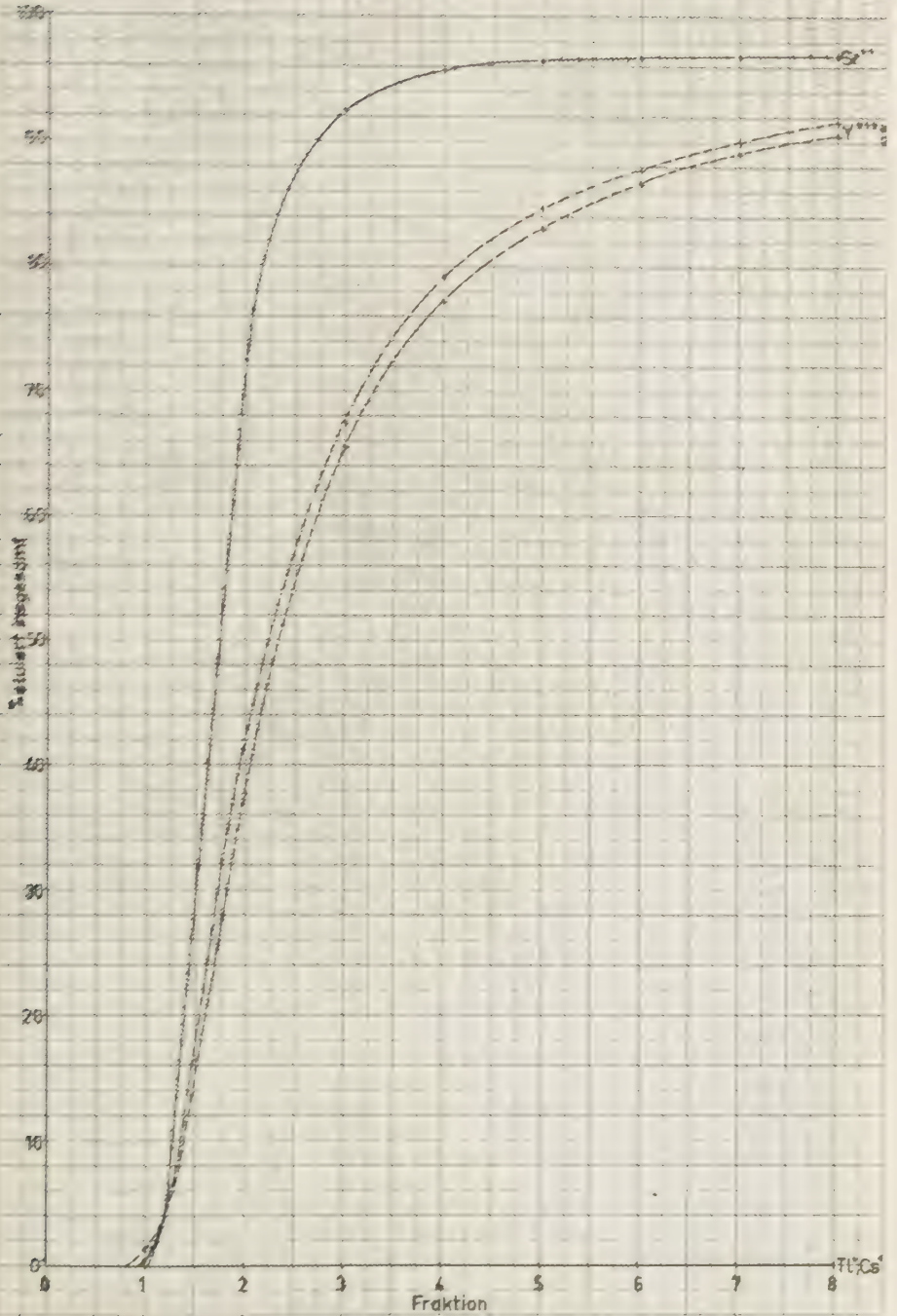
0.5 n HCl



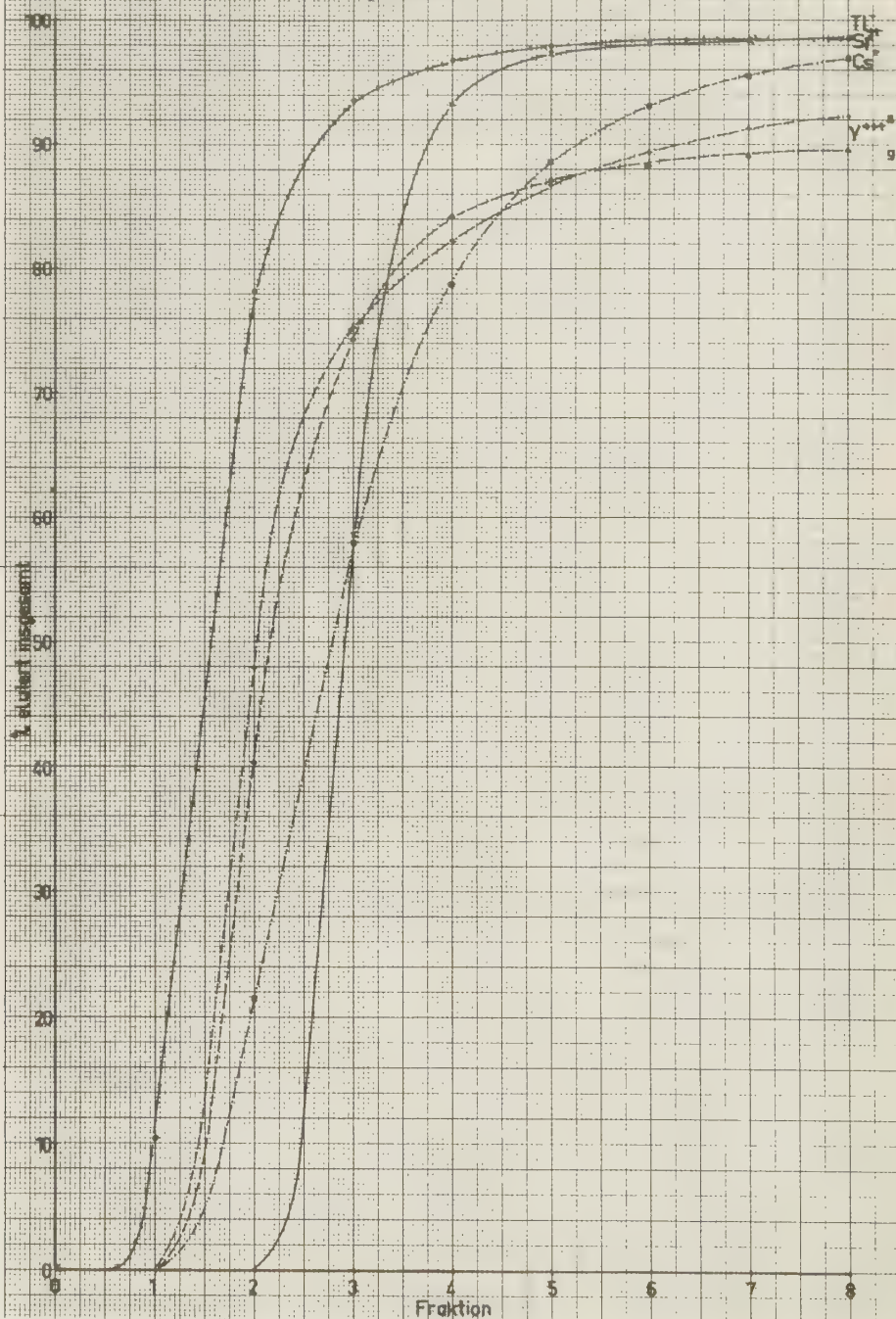
Zr-Phosphat / Silikat

X-Erre

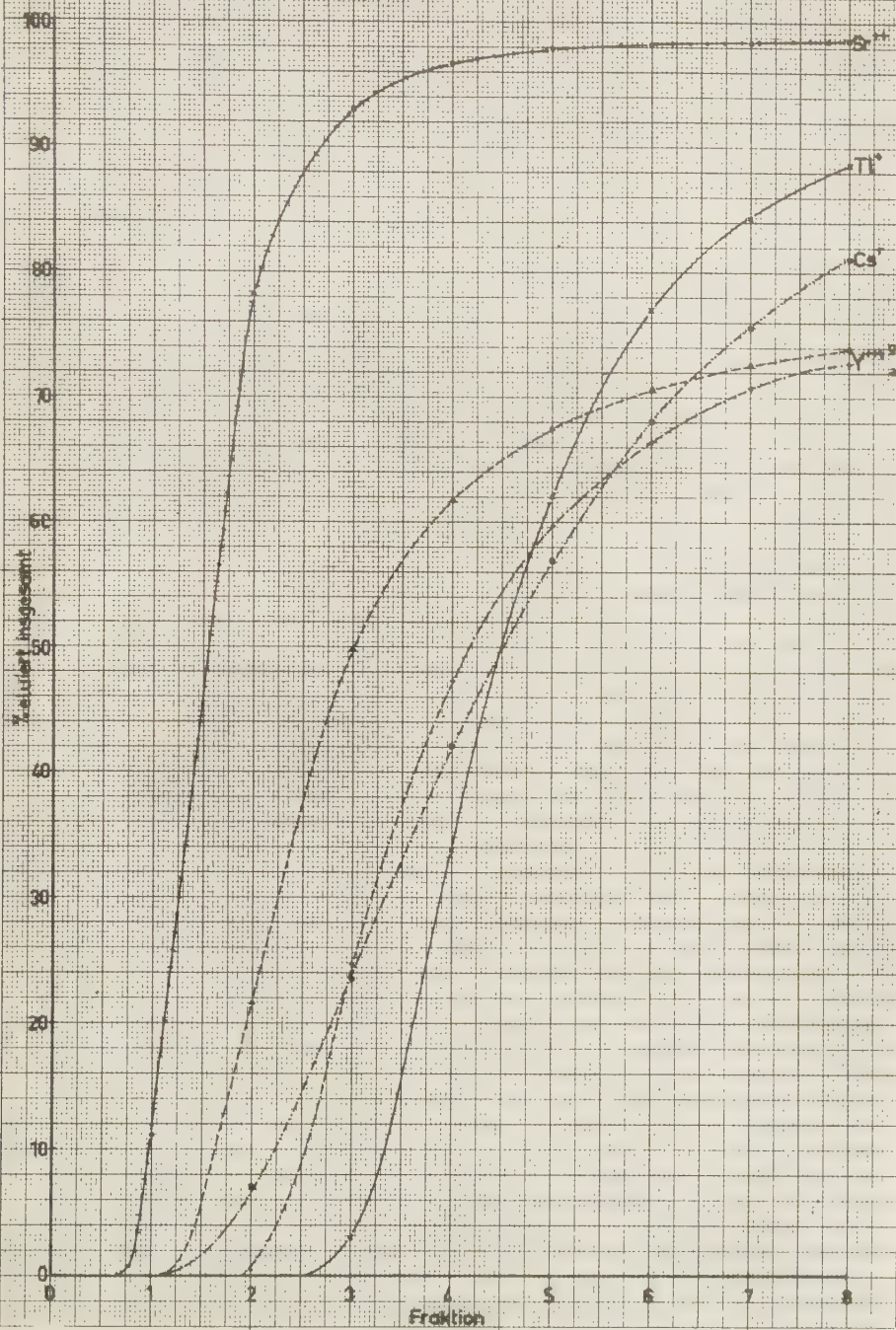
DJ n HCl



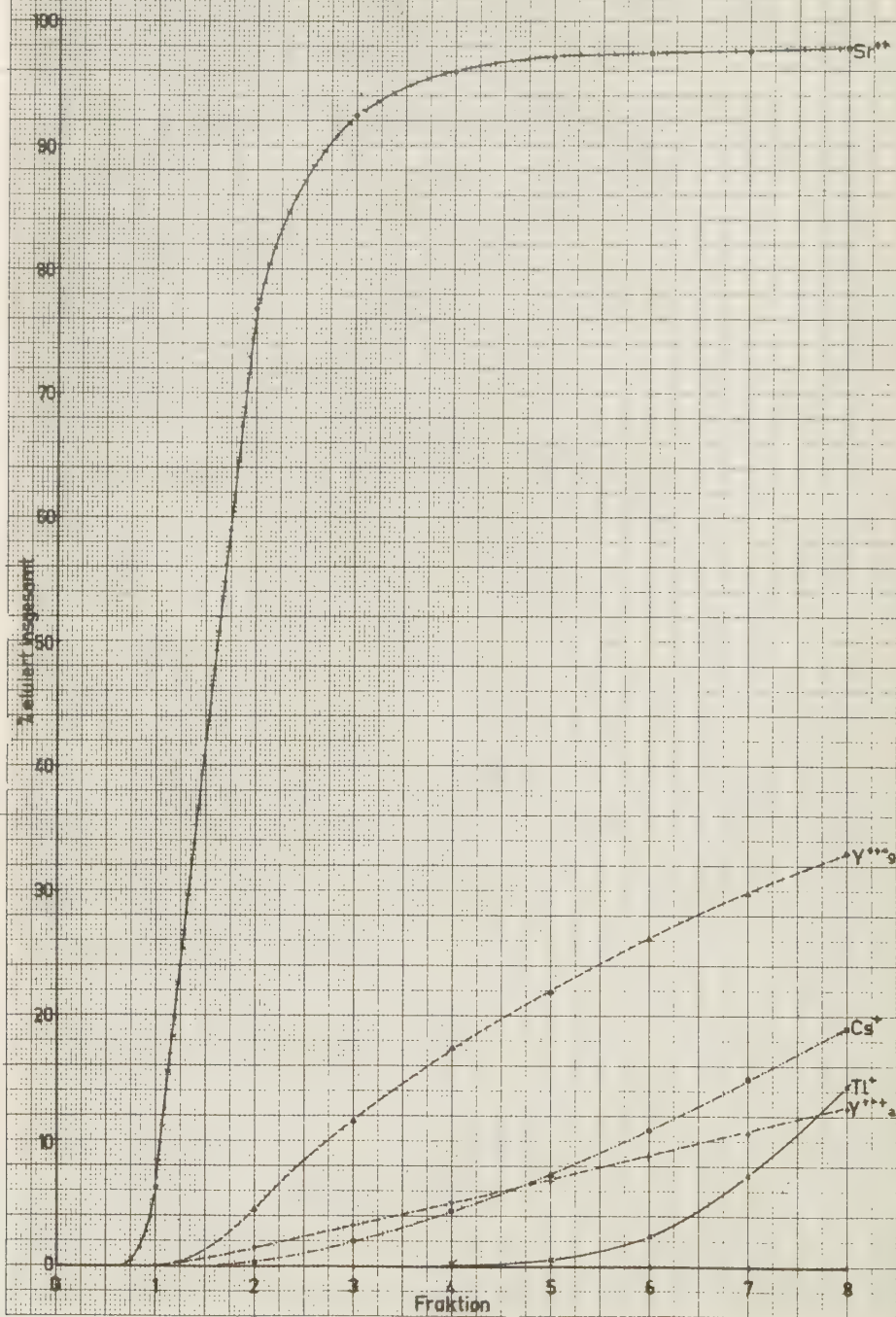
Zr-Hypophosphat / Säure
H-Form
2,0 n HCl



Zr-Hypophosphat / Säure
H-Farm
0,5 n HCl



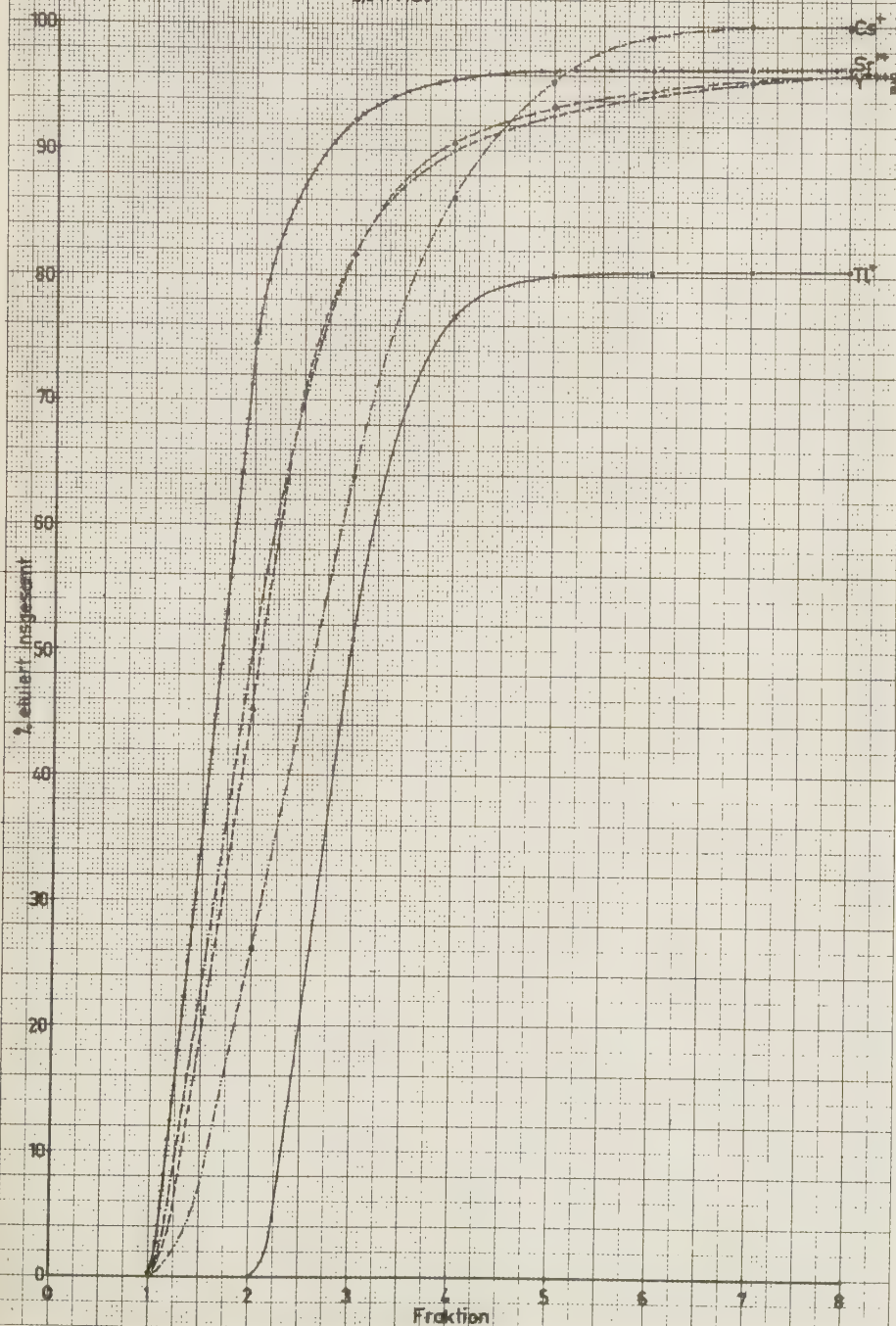
Zr-H-phosphat/Silikat
I-Form
0,3 n HCl



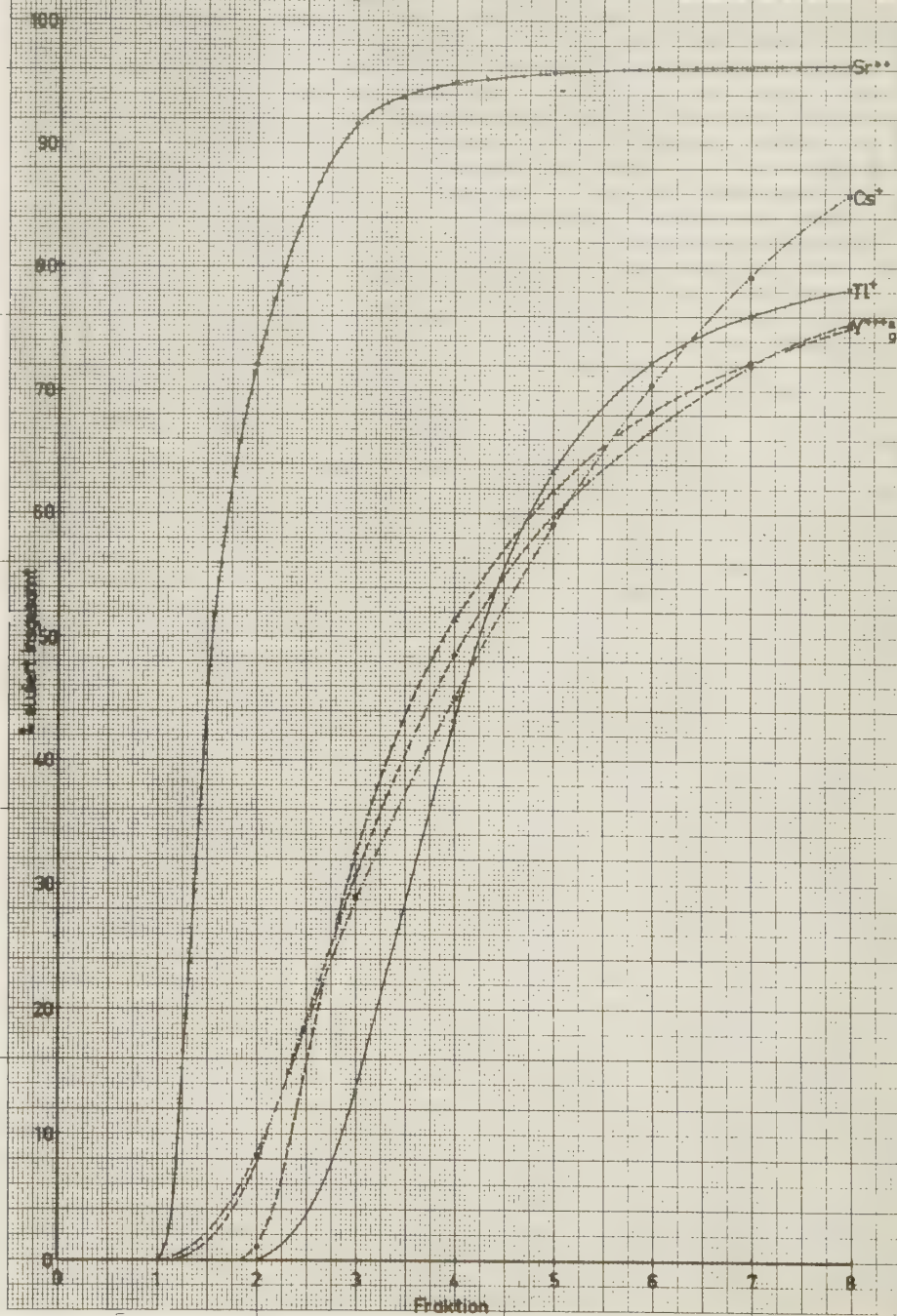
Zr-Hypophosphat/Silikat

NH₄-Form

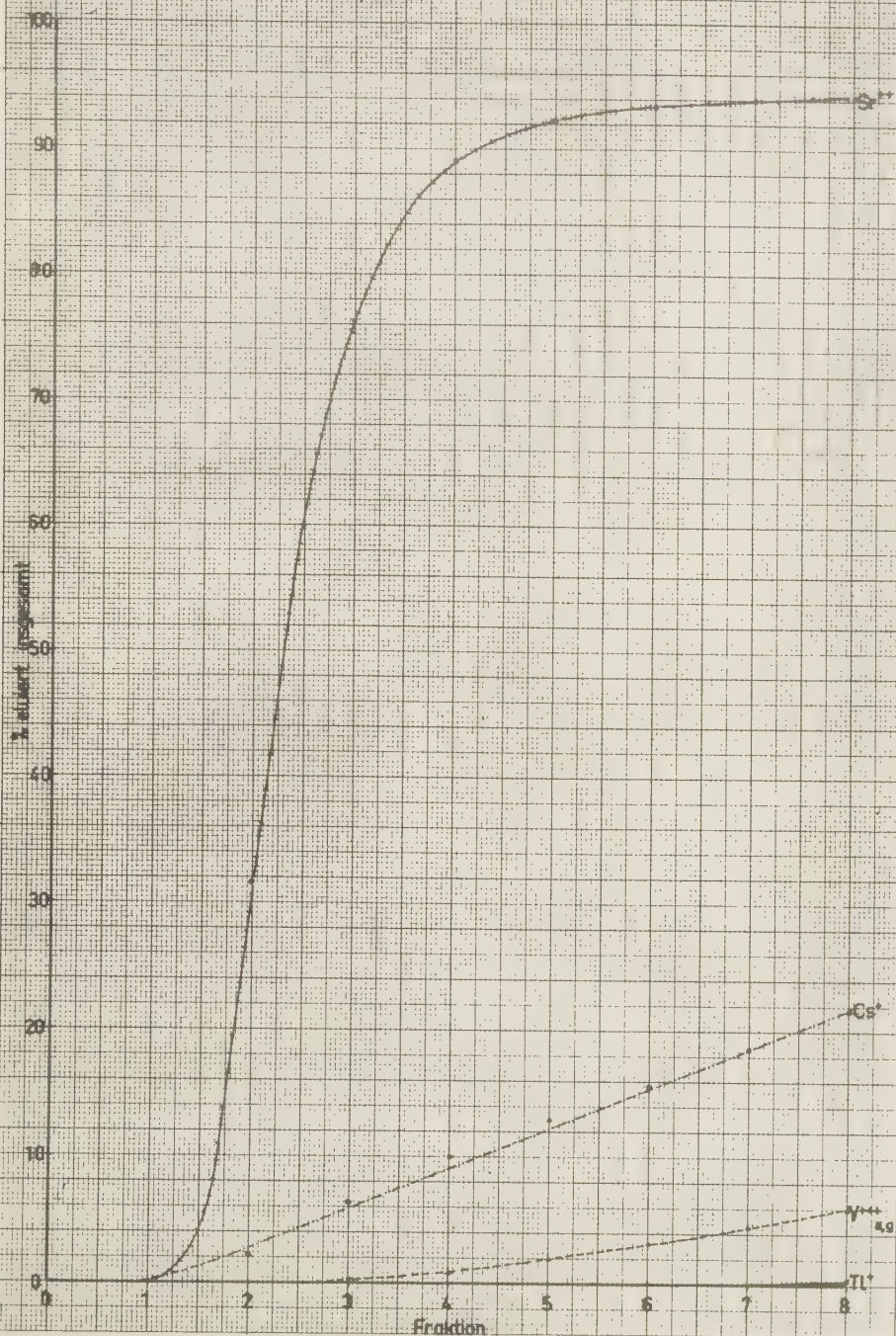
2,0 n HCl



Zr-Hypophosphat / Silikat
 $\text{NH}_4\text{-Form}$
 0,5 n HCl



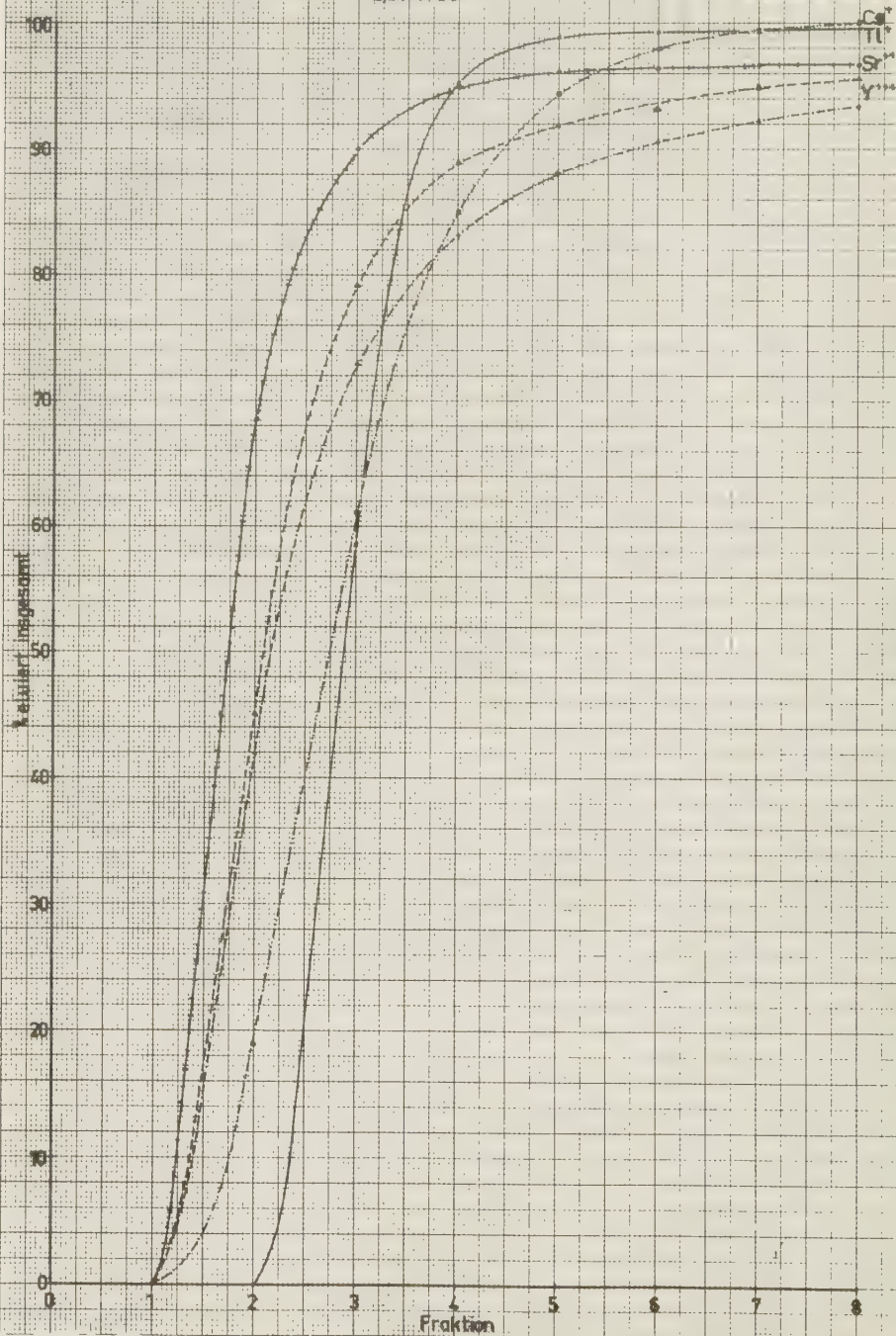
Zr-Hydrophosphat / SEkol
 $\text{NH}_4\text{-Form}$
 0.1N HCl



Zr-Hypophosphat/Silikat

Na-Form

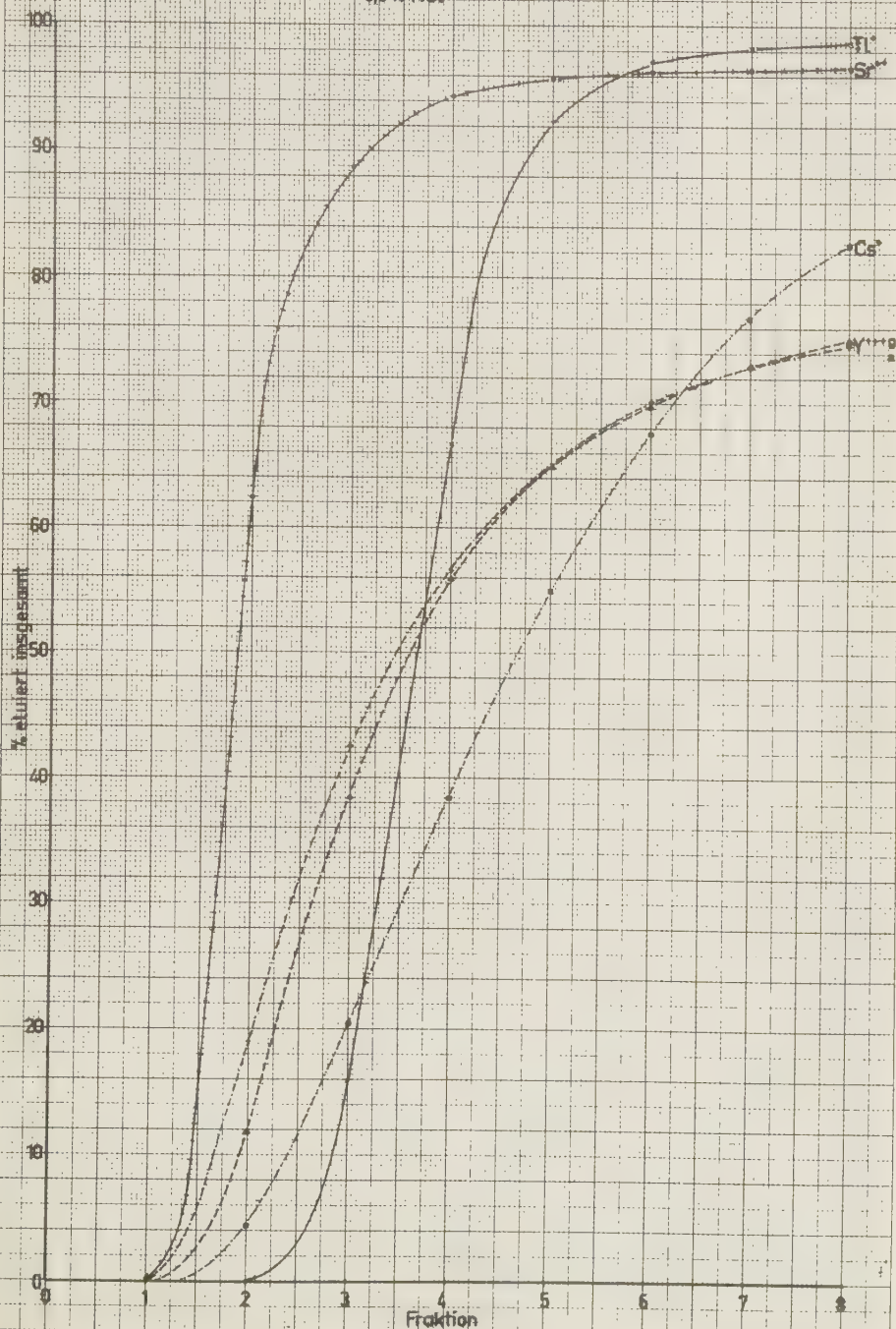
2,0n HCl



Zr-Hypophosphat/Silikat

Na-Form

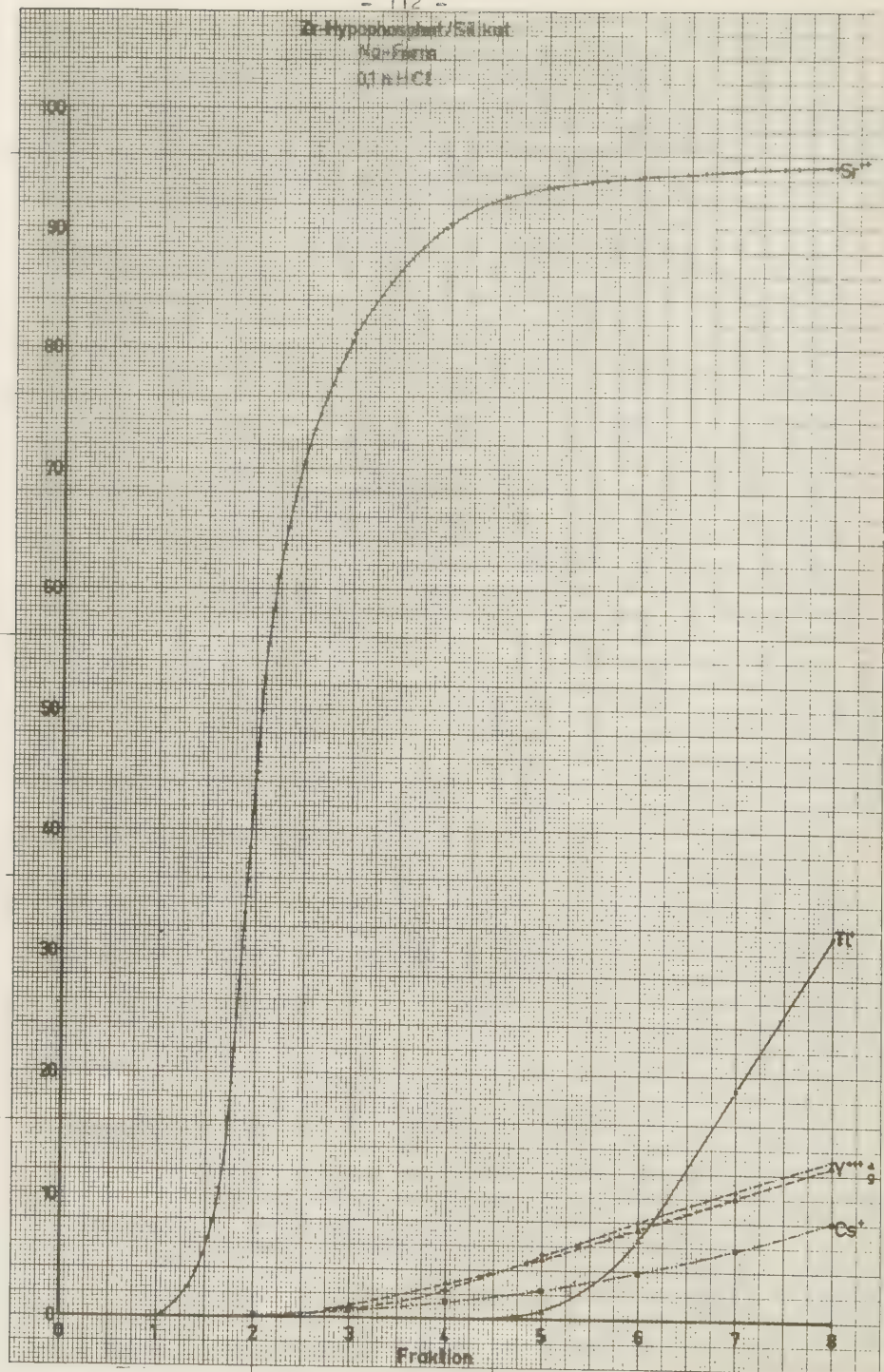
0.5 n HCl



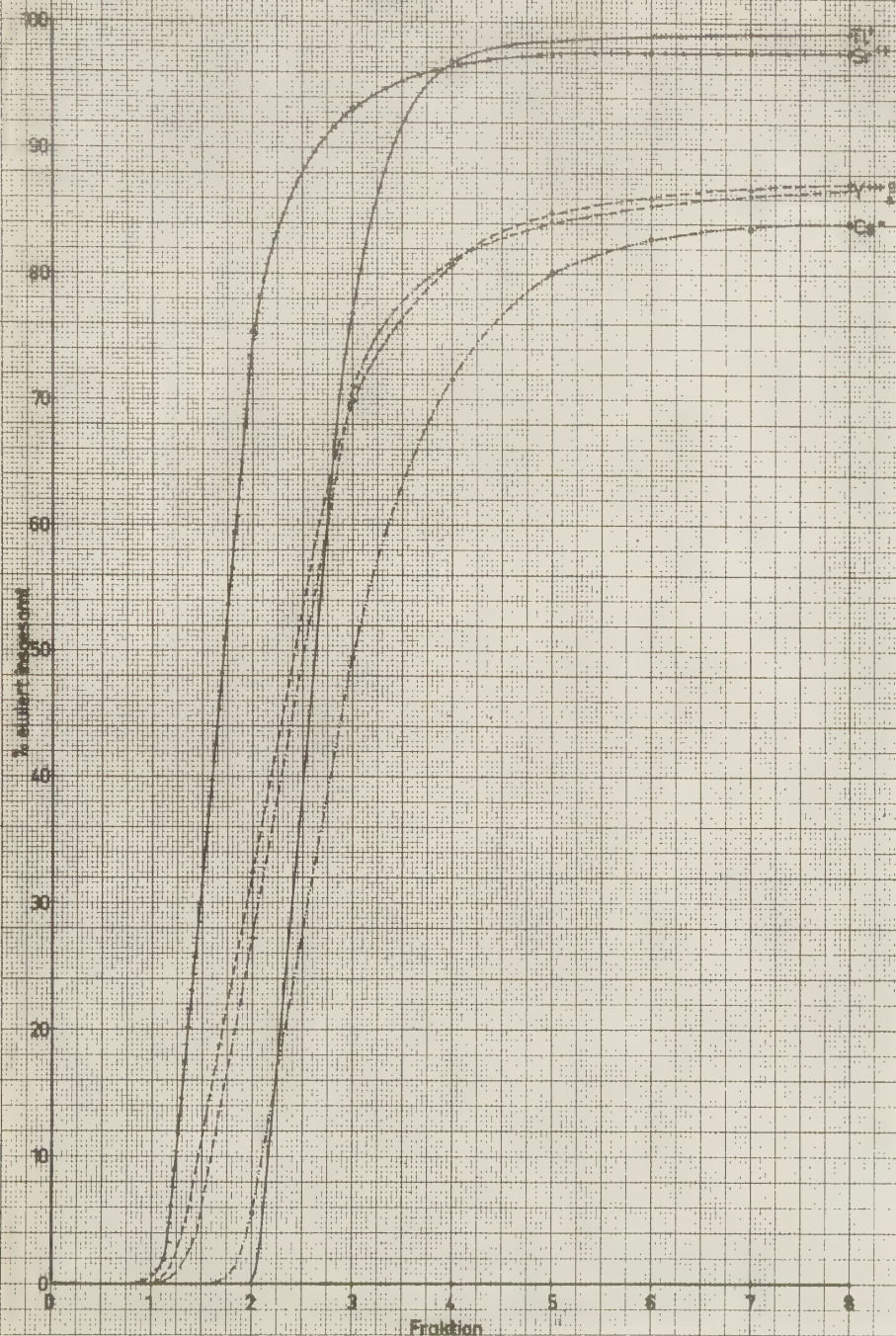
Zr-Hypophosphat/Sil/kat

12-Form

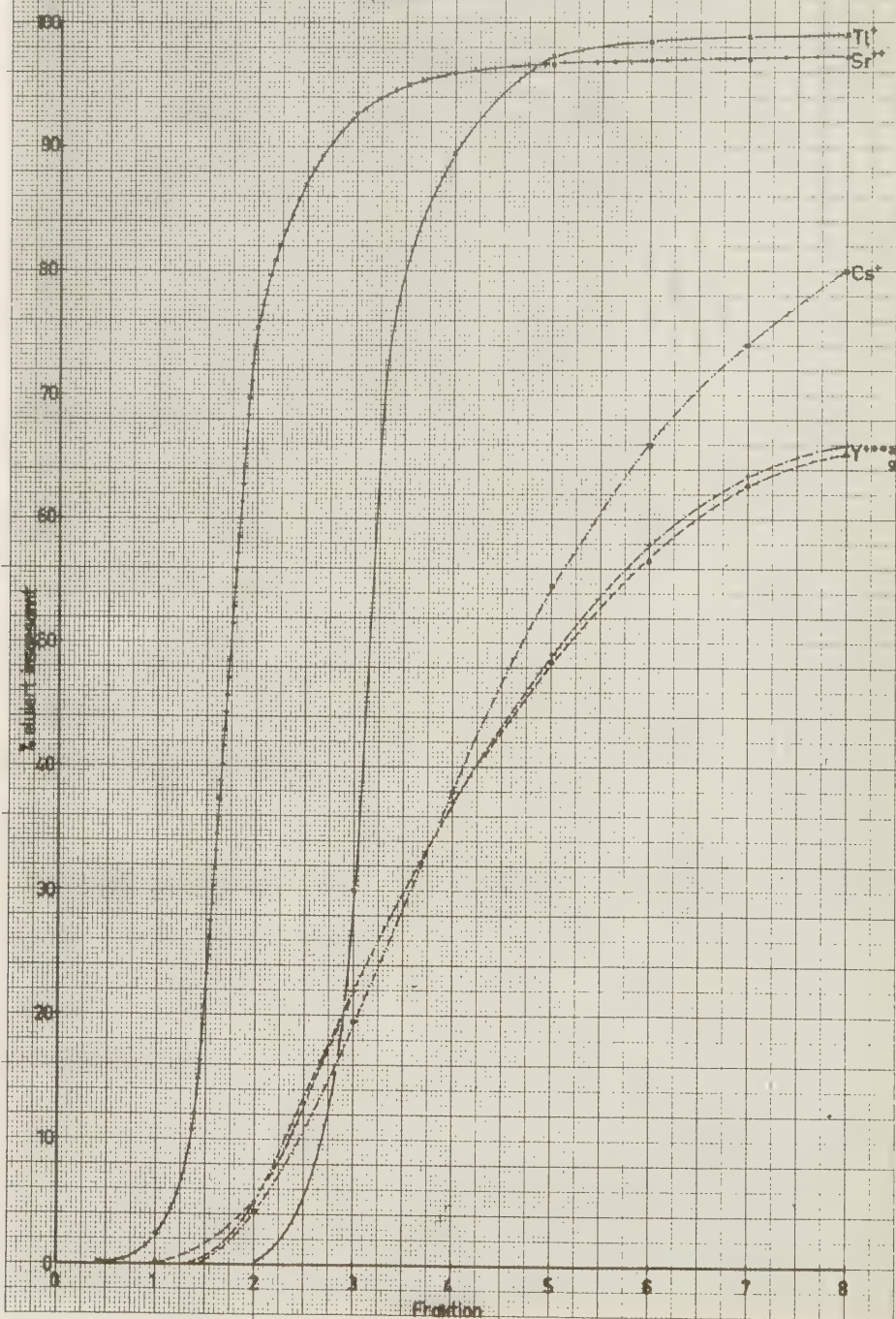
0,1N HCl



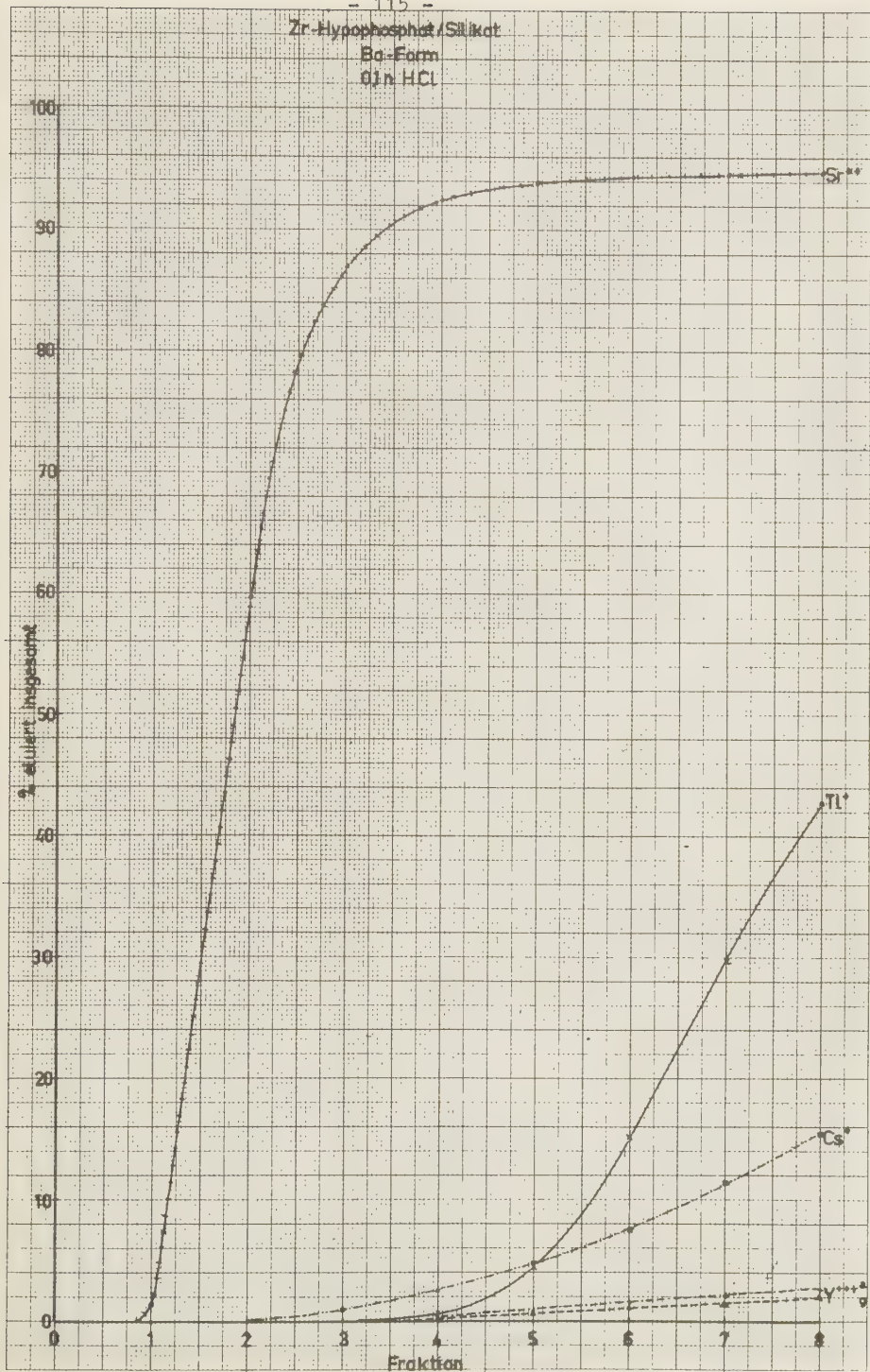
Zr-hydrophosphat/Silicat
Ba-Form
20n HCl



Zn-Hypophosphat/Silicat
Ba-Form.
0.5n HCl



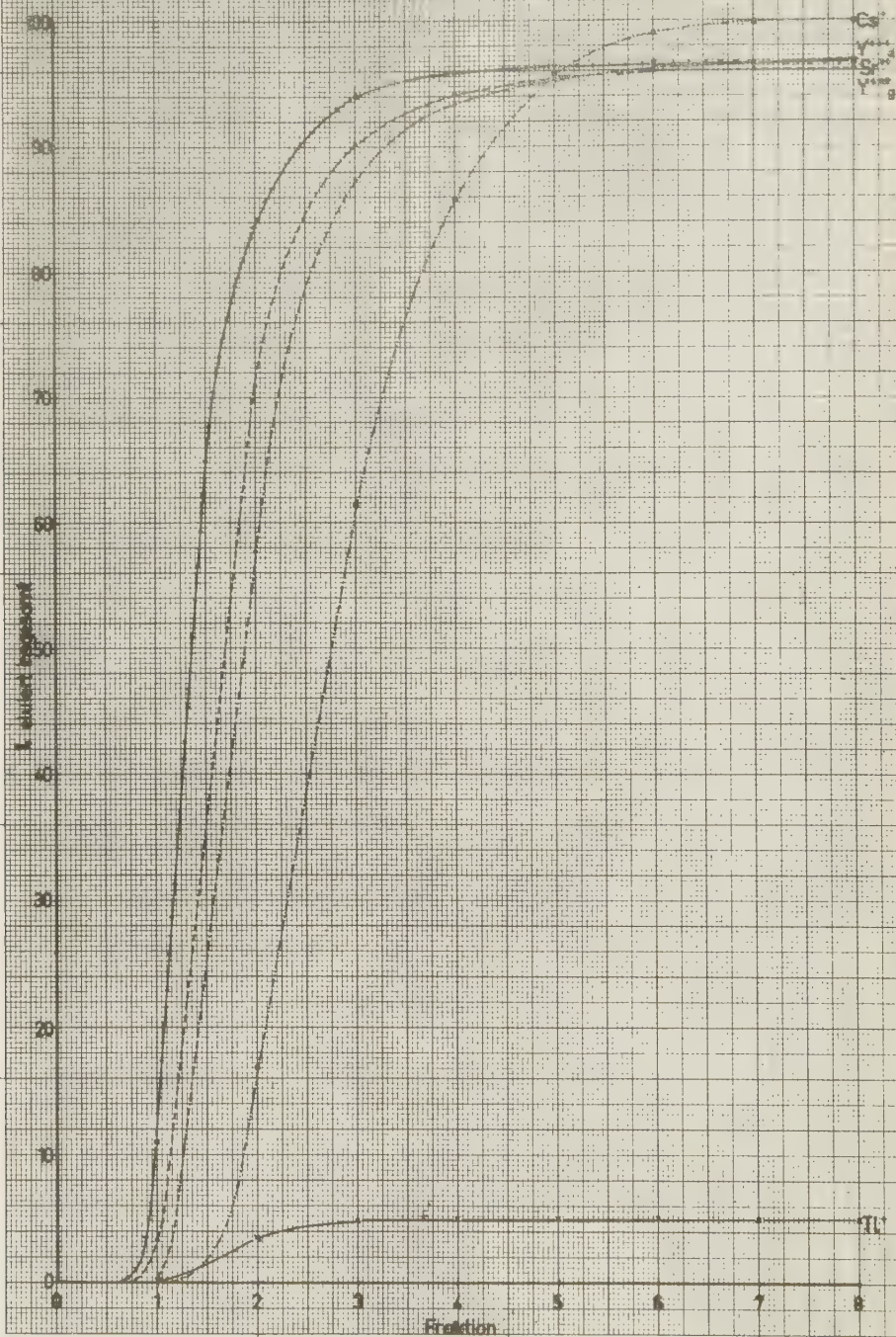
Zr-Hypophosphat/Silikat
Bq-Form
0,1n HCl



Zr-Hydroxyapatite/Silicat

Y-Fern

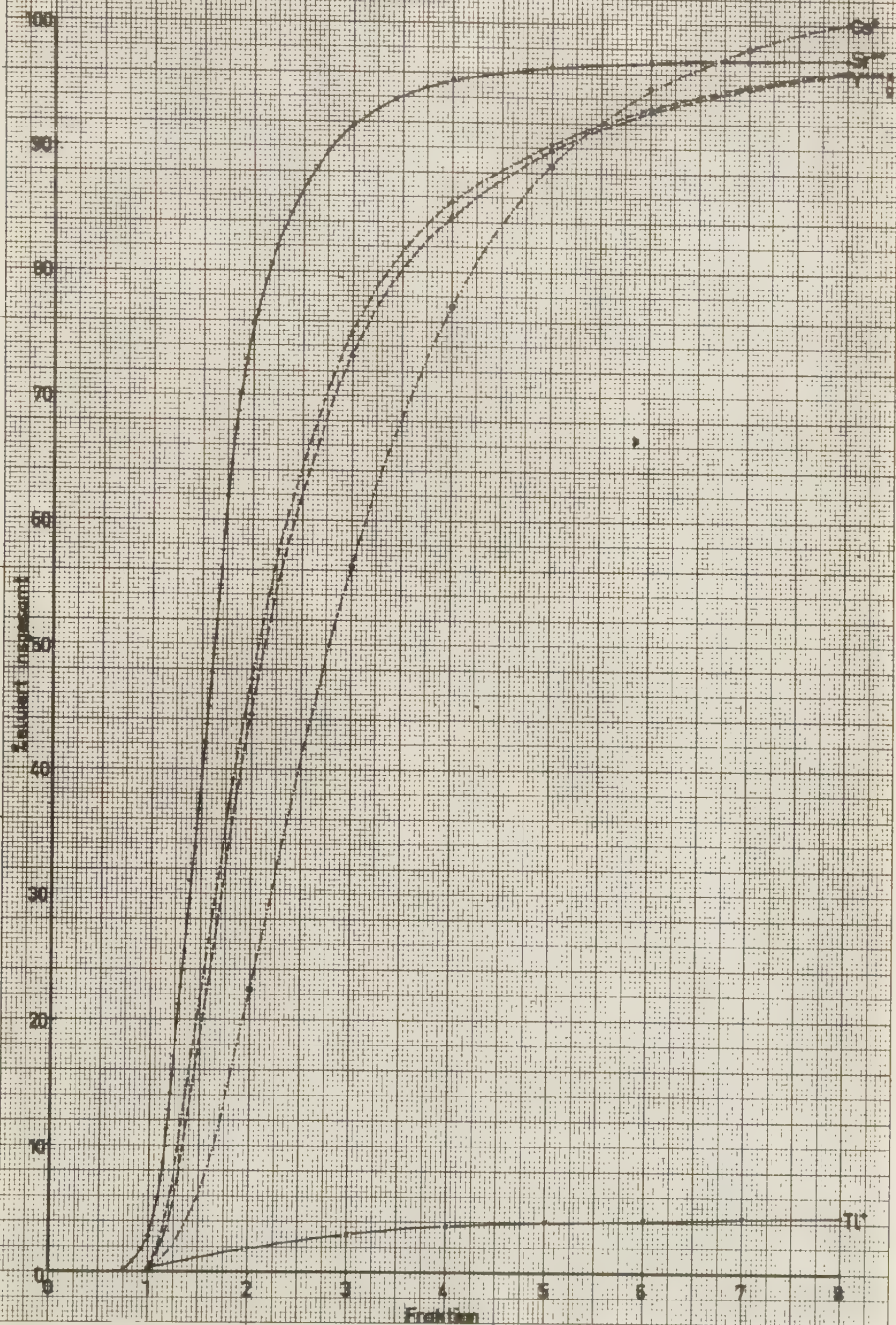
2.0 nM3



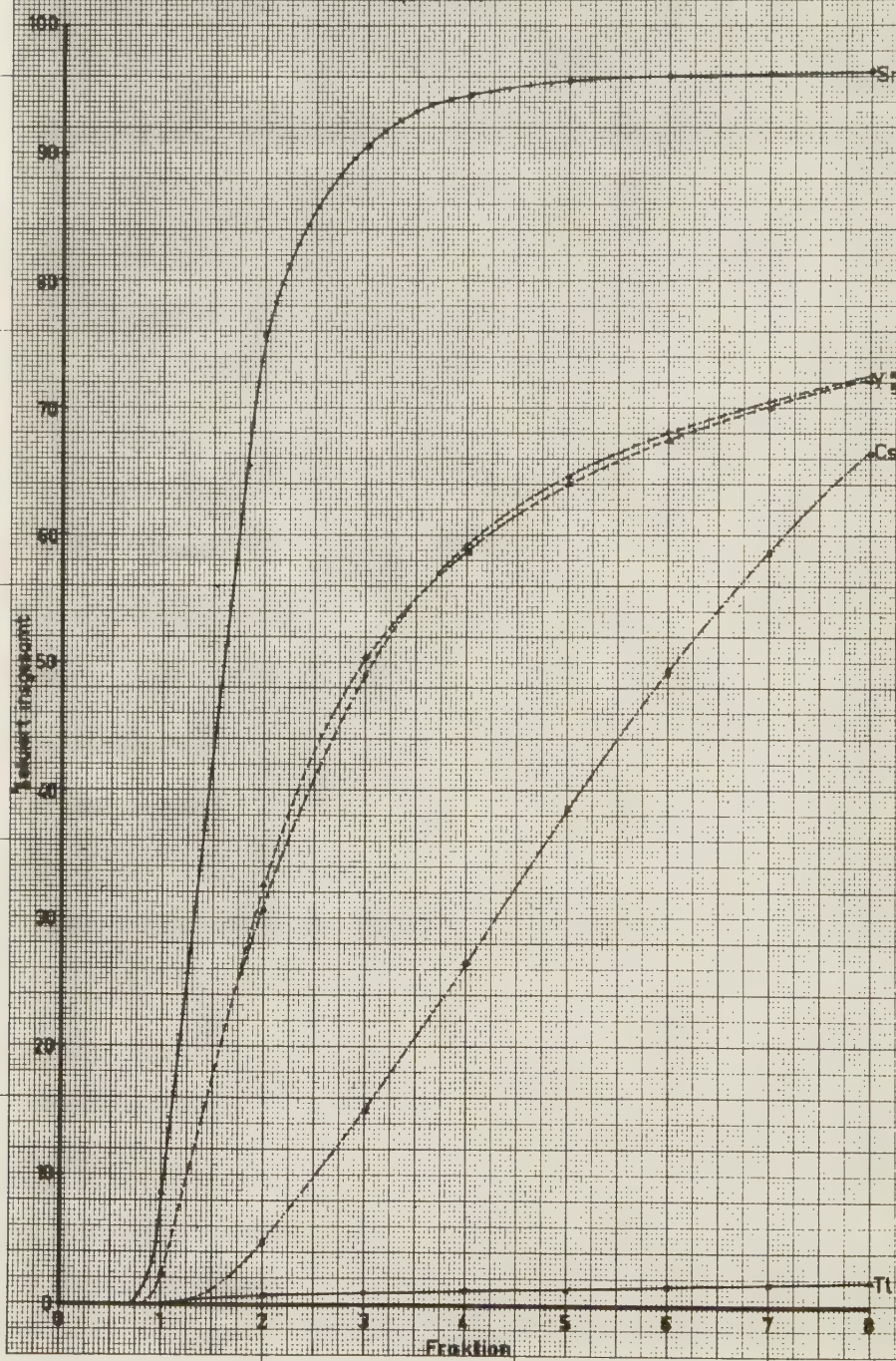
Zr-Hypophosphat / SSäure

Y-Form

0.5nHCl



Zr-Hypophosphat/Silikat
Y-Form
0,1 n HCl



VI. ZUSAMMENFASSUNG.

Die durch Mischfällungen von Zirkonphosphaten mit Silikat erhaltenen grobkörnigen Austauschermaterialien zeigen im wesentlichen die gleichen Austauschereigenschaften wie die reinen Phosphate. Es wurde nachgewiesen, daß die Silikatmatrix im sauren Medium adsorptionsinaktiv ist. Die Mischfällungen sind aber für die Säulentechnik bedeutend besser geeignet als die feindispersen reinen Zirkonphosphate, die einen großen Strömungswiderstand verursachen und leicht ein Verstopfen der Säulen hervorrufen.

Es wurde versucht, die Trenneffekte der so erhaltenen Austauscher durch eine Vorbeladung mit geeigneten inaktiven Ionen unterschiedlicher Wertigkeit weiter zu steigern. Wird der Austauscher mit einem stabilen Ion vorbeladen, dessen Affinität zum Austauscher zwischen denjenigen der zu trennenden Radionuklide liegt, so schiebt sich dieses bei der Elution zwischen die Zonen der Radionuklide und drückt diese auseinander. Die Überlappungen der Elutionszonen werden dabei verkleinert oder sie verschwinden gänzlich.

Bei der Trennung Sr/Y an Zirkonhypophosphat mit 0,1 n Salzsäure konnte so z. B. durch eine Vorbeladung mit Ba^{++} -Ionen der Trennfaktor gegenüber dem nicht vorbehandelten Austauscher um über 2 $1/2$ Zehnerpotenzen verbessert werden. Dagegen war am Zirkonphosphat ein derartiger Effekt nicht zu erzielen.

Das Zirkonphosphat ist aber besonders für eine Abtrennung des $^{137}Ba^m$ von seiner Muttersubstanz gut geeignet, und eine mit ^{137}Cs beladene Zirkonphosphatsäule läßt sich wegen der kurzen Halbwertszeit des Tochterkerns als ein nahezu stets einsatzbereiter Generator für dieses Isotop verwenden. Die erzielte radiochemische Reinheit des $^{137}Ba^m$ mit einer Ver-

unreinigung an ^{137}Cs von kleiner als 10^{-4} (0,01 %) ändert sich auch bei vielfacher Wiederholung der Elution nicht.

Ziel zukünftiger Arbeiten sollte es sein, Methoden zur Darstellung reiner, grobkörniger Zirkonphosphate zu finden und an diesen durch ihre große Stabilität besonders für die Radiochemie hervorragend geeigneten Austauschern den Einfluß der Vorbeladung mit inaktiven Ionen auf eine Steigerung der Selektivität weiter zu untersuchen.

VII. LITERATURVERZEICHNIS.

HOLLEMAN	Lehrbuch der Anorganischen Chemie
REMY	Anorganische Chemie
BRESLER	Die radioaktiven Elemente
MERTH-KOCH	Radiophysik. u. radiochem. Grundpraktikum
STARIK	Grundlagen der Radiochemie
HELFFERICH	Ionenaustauscher, Band 1
GRIESSBACH	Austauschadsorption in Theorie und Praxis
GRIESSBACH	Ionenaustauscher in Einzeldarstellungen Band 1: Anomalien bei Ionenaustauschvor- gängen
BLASIUS	Chromatographie und Ionenaustausch in der analytischen und präparativen Chemie
DÖRNER	Ionenaustauscher Eigenschaften u. Anwendung
FÜNFER u. NEUBERT	Zählrohre und Szintillationszähler
GMEIN	Handbuch der anorganischen Chemie Band 42, Zirkon

- 1 K.H.KONIG, H.SCHÄFER, F.HOYER, G.RASSL
Radiochimica Acta 1963, im Druck
Grobkörnige anorganische Ionenaustauscher mit inaktiver Matrix.
- 2 H.SCHÄFER
Dissertation, Frankfurt (Main), 1961
Schwerlösliche Phosphate des Zirkon als Adsorptionsmittel für Radionuklide.
- 3 K.A.KRAUS, H.O.PHILLIPS
J.Amer.chem.Soc. 78, 249 (1956)
Anion exchange studies XIX. Anion exchange properties of hydrous zirconium oxides.
- 4 K.A.KRAUS, T.A.CARLSON, J.S.JOHNSON
Nature, London, 177, 1128 (1956)
Cation-exchange properties of Zr(IV) and W(VI)-precipitates.
- 5 K.A.KRAUS
U.S.A.E.C., ORNL-2159 (1956)
Rapid separation by ion-exchange.
- 6 K.A.KRAUS, F.NELSON
Annual Rev. of Nucl. Science 7, 31-46 (1957)
Radiochemical separation by ion-exchange.

- 7 C.B.AMPHLETT, L.A.Mc DONALD, M.J.REDMAN
J.Inorg. & Nucl.Chem. 6, 220 (1958)
Synthetic inorganic ion-exchanger materials I.
- 8 C.B.AMPHLETT
Int.Conf.on peaceful uses of Atomic Energy
A/CONF. 15/P/271, Genf, 1958
The application of synthetic inorganic ion-exchangers
in atomic energy.
- 9 A.BURDESEJ, M.L.BORLERA
Atti accad.sci.Torino, Classe sci.,fis.,mat. e nat.
94, 97 (1959/60)
Das System $ZrO_2 - P_2O_5$.
- 10 V.S.ZLOBIL
KFK-tr-112; Radiochimija Bd.4, Nr.1 S. 54-59 (1962)
Adsorption von Y und Zr an Zr-Phosphaten.
- 11 H.P.GREGOR, J.I.BREGMAN
J.Amer.chem.Soc. 70, 2370-73 (1948)
Charakterization of ion exchange resin I. Acity and
number of constituent cation exchange groups.
- 12 J.I.BREGMAN, Y.MURATA
J.Amer.chem.Soc. 74, 1867 (1952)
Phosphonous and phosphonic cation exchange resins.
- 13 I.J.GAL, O.S.GAL
Int.Conf.on peaceful uses of atomic energy
A/CONF. 15/P/468, Genf, 1958
The ion exchange of uranium and some fission products
on Ti- and Zr-phosphates.
- 14 E.M.LARSEN, W.C.FERNELIUS, L.L.QUILL
Ind.engg.Chem.anal.Edit., 15, 512-5 (1943)
Concentration of Hafnium. Preparation of Hafnium-free
Zirconia.
- 15 C.B.AMPHLETT, L.A.Mc DONALD
J.Inorg. & Nucl.Chem. 10, 69 (1959)
Synthetic inorganic ion exchanger materials III.
- 16 F.G.PROKHOROV, S.S.IVANOVA
Izvest.Vsesoyuz.Teplotekh.Inst. 21, No.4, 8-13 (1952)
Chem.Abstr. 48, 3101 (1954)
- 17 H.P.GREGOR
J.Amer.chem.Soc. 70, 1293 (1948)
A general Thermodynamic Theory of ion-exchange processes.

- 18 H.P.GREGOR
J.Amer.chem.Soc. 73, 642-50 (1951)
Gibbs-Donnan Equilibria in ion-exchange resin systems.
- 19 G.E.BOYD, B.A.SOLDANO
Z.Elektrochem. 57, 162-72 (1953)
Osmotic free energies of ion exchangers.
- 20 H.GETROST
Dissertation, Darmstadt, 1958
Adsorption von Kationen an Silikagel.
- 21 K.A.KRAUS, H.O.PHILLIPS
J.Amer.chem.Soc. 78, 694
Adsorption on inorganic materials I. Cation exchange properties of zirconium phosphate.
- 22 F.HOYER
Diplomarbeit, Frankfurt (Main), 1960
Sr/Y-Trennung durch Extraktion mit TTA.
- 23 H.O.PHILLIPS, K.A.KRAUS
U.S.A.E.C., ORNL-3176 (1961), 48
Adsorption on inorganic materials.
- 24 K.GLEU
Ionenaustauscher in Einzeldarstellungen, Band 1.
Abschnitt "Radiochemische Beobachtungen an Ionenaustauschern".
- 25 W.WIESNER
Ingenieur-Arbeit, Köthen 1953
Über den Einfluß der Filtrationsgeschwindigkeit auf das Eintauchverhältnis zweier Kationen verschiedener Wertigkeit bei synthetischen organischen Austauschadsorbentien.
- 26 K.A.KRAUS, H.O.PHILLIPS, T.A.CARLSON, J.S.JOHNSON
Proc. of the 2nd Inter. Conf. on peaceful uses of the Atomic Energy, Genf 1958, 28, 3.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Professor Dr. K. G L E U möchte ich meinen aufrichtigen Dank für die wertvollen Anregungen und die mir zuteil gewordene Förderung aussprechen.

Herrn Dr. K. H. K Ö N I G schulde ich großen Dank für seine stete Unterstützung und viele klärende Gespräche.

Der D E C H E M A sei für die Gewährung eines Paul Duden-Stipendiums, das mir die Anfertigung dieser Arbeit finanziell erheblich erleichterte, herzlich gedankt.

Dem Hessischen Minister für Wirtschaft und Verkehr sei an dieser Stelle für die über die Max Buchner-Forschungsstiftung der DECHEMA zur Verfügung gestellten Mittel für "Untersuchungen anorganischer Adsorbentien für die Trennung von Aktiniden und Kernspaltprodukte", in deren Rahmen diese Arbeit durchgeführt wurde, besonders gedankt.

Ich erkläre hiermit an Eides statt, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig unter Zuhilfenahme der angegebenen Literatur angefertigt habe.

Frankfurt am Main, den 1. September 1963.

Richard Rassel

LEBENS LAUF

Als Sohn des Bankangestellten Josef Rassl und seiner Ehefrau Anna, geb. Häupl, wurde ich, Gerhard Rassl, am 23. Februar 1930 in Karlsbad geboren.

Von 1936 bis 1940 besuchte ich die 2. Knabenvolksschule in Karlsbad und anschließend die 1. bis 5. Klasse der Oberschule für Jungen in Karlsbad. Nach dem Einmarsch der Roten Armee arbeitete ich bis Dezember 1945 als Bauhilfsarbeiter bei der Entrümmerung meiner Heimatstadt. Nach der Vertreibung durch die Tschechen besuchte ich ab Juli 1946 von Winkels im Oberlahnkreis aus die Obertertia bis Oberprima des Gymnasium Philippinum in Weilburg an der Lahn und legte im Februar 1951 an dieser Schule das Abitur ab.

Im Sommersemester 1951 begann ich an der Johann Wolfgang Goethe-Universität das Chemiestudium. Zur Finanzierung des Studiums arbeitete ich sechsmal in verschiedenen Abteilungen der Deutschen Bank AG in Frankfurt und später wiederholt im Betriebslaboratorium der Firma Techno-Chemie Keßler & Co. G. m. b. H. in Frankfurt-West.

1956 legte ich meine Diplom-Chemiker-Vorprüfung und 1959 die Diplom-Chemiker-Hauptprüfung ab.

Anschließend begann ich bei Herrn Professor Dr. K. Gleu meine Diplomarbeit über das Thema "Versuche zur Darstellung von trägerfreiem $^{210}_{82}\text{Pb}$ (RaD) mit Hilfe von Ionenaustauschern", die ich im Juni 1960 beendete.

Es schloß sich die vorliegende Arbeit an, die im Januar 1963 ihren Abschluß fand.

Im April 1963 wurde ich als wissenschaftliche Hilfskraft im Institut für Anorganische Chemie der Universität Frankfurt am Main angestellt.

